



Europäisches Patentamt  
European Patent Office  
Office européen des brevets

Veröffentlichungsnummer:

0 281 842  
A1

1

(12)

## EUROPÄISCHE PATENTANMELDUNG

(21) Anmeldenummer: 88102676.9

(51) Int. Cl.: C07D 405/06, C07D 413/06,  
C07D 411/06, C07D 317/72,  
C07D 327/04, C07D 417/12,  
C07D 411/14, A01N 43/28,  
A01N 43/30

(22) Anmeldetag: 24.02.88

(30) Priorität: 07.03.87 DE 3707364  
21.10.87 DE 3735555

(43) Veröffentlichungstag der Anmeldung:  
14.09.88 Patentblatt 88/37

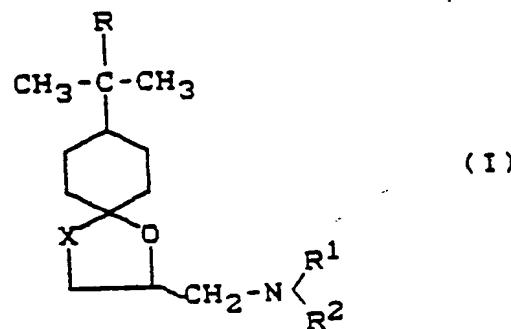
(84) Benannte Vertragsstaaten:  
BE CH DE ES FR GB IT LI NL

(71) Anmelder: BAYER AG  
Konzernverwaltung RP Patentabteilung  
D-5090 Leverkusen 1 Bayerwerk(DE)

(72) Erfinder: Krämer, Wolfgang, Dr.  
Rosenkranz 25  
D-5093 Burscheid 2(DE)  
Erfinder: Weissmüller, Joachim, Dr.  
Carl-Langhans-Strasse 53  
D-4019 Monheim(DE)  
Erfinder: Berg, Dieter, Dr.  
Gellertweg 27  
D-5600 Wuppertal 1(DE)  
Erfinder: Dutzmann, Stefan, Dr.  
Leinenweberweg 33  
D-4000 Düsseldorf 13(DE)

(54) Aminomethylheterocyclen.

(57) Aminomethylheterocyclen der allgemeinen Formel (I).



EP 0 281 842 A1

in welcher

R, R<sub>1</sub>, R<sub>2</sub> und X die in der Beschreibung angegebene Bedeutung haben,  
Säureadditionssalze, geometrische und optische Isomere und Isomerengemische und ihre Verwen-  
dung als Schädlingsbekämpfungsmittel.

Die neuen Aminomethylheterocyclen der Formel (I) können nach Analogieverfahren hergestellt werden, so

z.B. indem man geeignete Heterocyclen mit geeigneten Aminen umsetzt und gegebenenfalls so erhältliche erfindungsgemäße Verbindungen weiter umsetzt mit geeigneten Alkylierungsmitteln und gegebenenfalls anschließend eine Säure addiert oder eine physikalische Trennmethode anschließt.

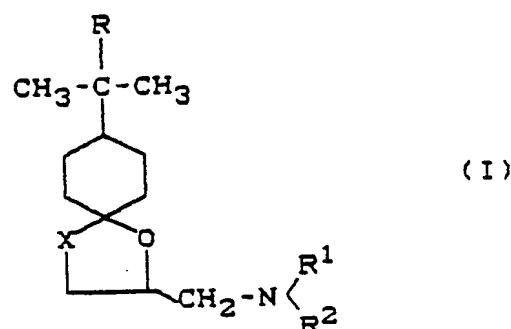
Aminomethylheterocyclen

Die Erfindung betrifft neue Aminomethylheterocyclen, mehrere Verfahren zu ihrer Herstellung sowie ihre Verwendung als Schädlingsbekämpfungsmittel.

Es ist bereits bekannt, daß bestimmte Aminomethyldioxolane, wie beispielsweise das 3-Isobutyl-2-methyl-3-(1-piperidinylmethyl)-dioxolan oder das 2-Methyl-2-nonyl-4-di-n-butylaminomethyldioxolan, fungizide Eigenschaften besitzen (vgl. EP 97 822).

Die Wirksamkeit dieser vorbekannten Verbindungen ist jedoch insbesondere bei niedrigen Aufwandmengen und Konzentrationen nicht in allen Anwendungsbereichen völlig zufriedenstellend.

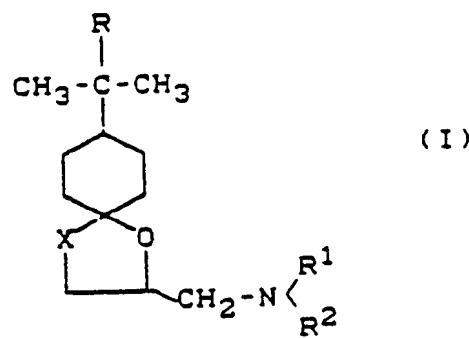
Es wurden neue Aminomethylheterocyclen der allgemeinen Formel (I),



- in welcher  
 X für Sauerstoff oder Schwefel steht.  
 25 R für Wasserstoff, Alkyl, oder für jeweils gegebenenfalls substituiertes Cyclohexyl oder Phenyl steht und  
 R<sup>1</sup> und R<sup>2</sup> unabhängig voneinander jeweils für Wasserstoff, Alkyl, Alkenyl, Alkinyl, Alkoxyalkyl, Dialkoxyalkyl, Hydroxyalkyl, Hydroxyalkoxyalkyl, Alkoxycarbonylalkyl, Dioxolanylalkyl, Dioxanylalkyl, Oxolanylalkyl oder für jeweils gegebenenfalls substituiertes Cycloalkylalkyl, Cycloalkyl, Aralkyl, Aralkenyl oder Aryl stehen  
 oder  
 30 R<sup>1</sup> und R<sup>2</sup> gemeinsam mit dem Stickstoffatom, an welches sie gebunden sind, für einen gegebenenfalls substituierten gesättigten Heterocyclus stehen, der gegebenenfalls weitere Heteroatome enthalten kann,  
 sowie deren pflanzenverträgliche Säureadditionssalze gefunden.

Die Verbindungen der Formel (I) können als geometrische und/oder optische Isomere oder Isomerengemische unterschiedlicher Zusammensetzung vorliegen. Sowohl die reinen Isomeren als auch die Isomerengemische werden erfindungsgemäß beansprucht.

35 Weiterhin wurde gefunden, daß man die neuen Aminomethylheterocyclen der allgemeinen Formel (I),

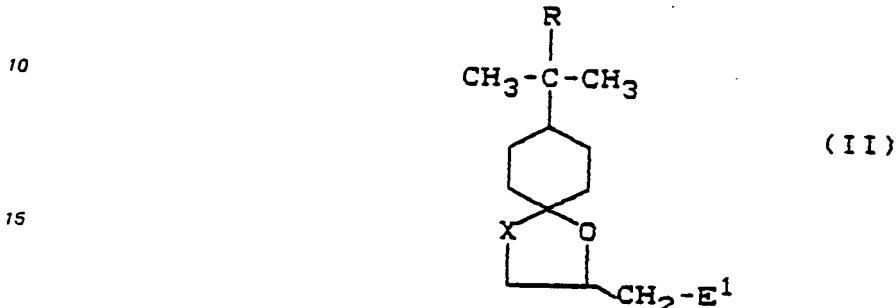


- 50 in welcher  
 X für Sauerstoff oder Schwefel steht.  
 R für Wasserstoff, Alkyl oder für jeweils gegebenenfalls substituiertes Cyclohexyl oder Phenyl steht und  
 R<sup>1</sup> und R<sup>2</sup> unabhängig voneinander jeweils für Wasserstoff, Alkyl, Alkenyl, Alkinyl, Alkoxyalkyl, Dialkoxyalkyl, Hydroxyalkyl, Hydroxyalkoxyalkyl, Alkoxycarbonylalkyl, Dioxolanylalkyl, Dioxanylalkyl, Oxolanylalkyl

oder für jeweils gegebenenfalls substituiertes Cycloalkylalkyl, Cycloalkyl, Aralkyl, Aralkenyl oder Aryl stehen oder

R<sup>1</sup> und R<sup>2</sup> gemeinsam mit dem Stickstoffatom, an welches sie gebunden sind, für einen gegebenenfalls substituierten gesättigten Heterocyclus stehen, der gegebenenfalls weitere Heteroatome enthalten kann.

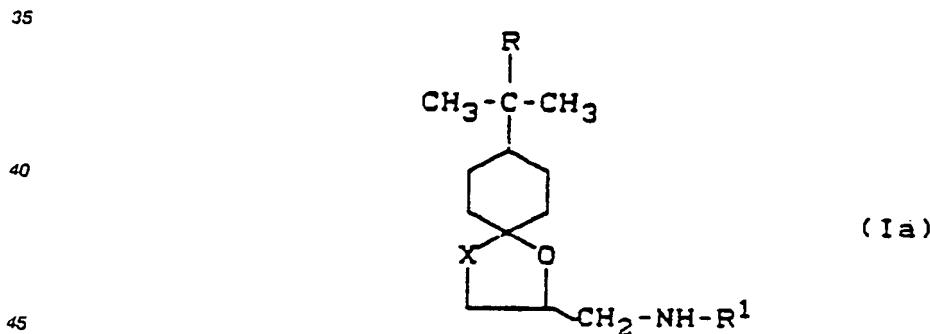
- 5 sowie deren pflanzenverträgliche Säureadditionssalze erhält, wenn man  
 (a) substituierte Heterocyclen der Formel (II),



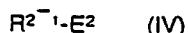
- 20 in welcher  
 R und X die oben angegebene Bedeutung haben und  
 E<sup>1</sup> für eine elektronenanziehende Abgangsgruppe steht,  
 mit Aminen der Formel (III),



- 30 in welcher  
 R<sup>1</sup> und R<sup>2</sup> die oben angegebene Bedeutung haben,  
 gegebenenfalls in Gegenwart eines Verdünnungsmittels und gegebenenfalls in Gegenwart eines  
 Säurebindermittels umsetzt, oder wenn man  
 (b) die nach Verfahren (a) erhältlichen Aminomethylheterocyclen der Formel (Ia),



- 45 in welcher  
 R, R<sup>1</sup> und X die oben angegebene Bedeutung haben,  
 mit Alkylierungsmitteln der Formel (IV),
- 50



- in welcher  
 R<sup>2</sup><sup>-1</sup> für Alkyl, Alkenyl, Alkinyl, Alkoxyalkyl, Dialkoxyalkyl, Hydroxyalkyl, Hydroxyalkoxyalkyl, Alkoxy carbonylalkyl, Dioxolanylalkyl, Dioxanylalkyl, Oxolanylalkyl oder für jeweils gegebenenfalls substituiertes Cycloalkyl, Cycloalkyl, Aralkyl oder Aralkenyl steht und  
 E<sup>2</sup> für eine elektronenanziehende Abgangsgruppe steht,  
 gegebenenfalls in Gegenwart eines Verdünnungsmittels und gegebenenfalls in Gegenwart eines

Säurebindermittels umsetzt und gegebenenfalls anschließend eine Säure addiert oder eine physikalische Transmethode anschließt.

Schließlich wurde gefunden, daß die neuen Aminomethylheterocyclen der allgemeinen Formel (I) eine Wirkung gegen Schädlinge, insbesondere gegen pilzliche Schädlinge besitzen.

Überraschenderweise zeigen die erfindungsgemäßen Aminomethylheterocyclen der allgemeinen Formel (I) eine bessere fungizide Wirksamkeit als die aus dem Stand der Technik bekannten Aminomethyldioxo-lane, wie beispielsweise das 2-Isobutyl-2-methyl-4-(1-piperidinylmethyl)-1,3-dioxolan oder das 2-Methyl-2-nonyl-4-di-n-butylaminomethyl-1,3-dioxolan, welches chemisch und wirkungsmäßig naheliegende Verbindungen sind.

10 Die erfindungsgemäßen Aminomethylheterocyclen sind durch die Formel (I) allgemein definiert. Bevor-  
zigt sind Verbindungen der Formel (I), bei welchen

X für Sauerstoff oder Schwefel steht.  
X für Sauerstoff oder Schwefel steht.

R für Wasserstoff, für geradketiges oder verzweigtes Alkyl mit 1 bis 5 Kohlenstoffatomen, gegebenenfalls ein- bis dreifach, gleich oder verschieden durch Alkyl mit 1 bis 4 Kohlenstoffatomen, das Halogen substituiertes Phenyl oder Cyclohexyl steht und

und/oder Halogen substituiertes Phenyl oder Cyclohexyl statt und R<sup>1</sup> und R<sup>2</sup> unabhängig voneinander jeweils für Wasserstoff; für jeweils geradkettiges oder verzweigtes Alkyl mit 1 bis 12 Kohlenstoffatomen, Alkenyl mit 3 bis 8 Kohlenstoffatomen, Alkinyl mit 3 bis 6 Kohlenstoffatomen, Sulfhydryl mit jeweils 1 bis 6

mit 1 bis 12 Kohlenstoffatomen, Alkenyl mit 3 bis 6 Kohlenstoffatomen, Alkyl mit 1 bis 6 Kohlenstoffatomen, Hydroxyalkyl mit 2 bis 6 Kohlenstoffatomen, Alkoxyalkyl oder Dialkoxyalkyl mit jeweils 1 bis 6 Kohlenstoffatomen oder Hydroxyalkoxyalkyl mit 2 bis 6 Kohlenstoffatomen in den einzelnen Alkylteilen, für Kohlenstoffatomen oder Hydroxyalkoxyalkyl mit 1 bis 6 Kohlenstoffatomen je Alkoxy- bzw. Alkylteil, für jeweils geradkettiges oder Alkoxcarbonylalkyl mit 1 bis 6 Kohlenstoffatomen im ver zweigtes Dioxolanylalkyl, Dioxanylalkyl oder Oxolanylalkyl mit jeweils 1 bis 4 Kohlenstoffatomen im Alkylteil oder für jeweils gegebenenfalls in Cycloalkylteil einfach bis mehrfach, gleich oder verschieden substituiertes Cycloalkyl oder Cycloalkylalkyl mit jeweils 3 bis 7 Kohlenstoffatomen im Cycloalkylteil und gegebenenfalls 1 bis 4 Kohlenstoffatomen im geradkettigen oder verzweigten Alkylteil stehen, wobei als

Substituenten jeweils infrage kommen:  
25 Halogen, jeweils geradkettiges oder verzweigtes Alkyl, Alkoxy, Halogenalkyl oder Halogenalkoxy mit jeweils

Halogen, jeweils geradkettiges oder verzweigtes Aryl, und je 1 bis 4 Kohlenstoffatome; außerdem für jeweils gegebenenfalls einfach bis mehrfach, gleich oder verschieden im Arylteil substituiertes Alkyl, Alkenyl oder Aryl mit jeweils 6 bis 10 Kohlenstoffatomen im Arylteil und gegebenenfalls bis zu

30 Arylalkyl, Arylalkenyl oder Aryl mit jeweils 6 bis 10 Kohlenstoffatomen im geradkettigen oder verzweigten Alkyl- bzw. Alkenylteil stehen, wobei als Arylsubstituenten jeweils infrage kommen: Halogen, Cyano, Nitro, jeweils geradkettiges oder verzweigtes Alkyl, Alkoxy, Alkylothio, Halogenalkyl, Halogenalkoxy, Halogenalkylthio, Alkoxycarbonyl oder Alkoximinoalkyl mit jeweils 1 bis 4 Kohlenstoffatomen in den einzelnen Alkylteilen und gegebenenfalls 1 bis 9 gleichen oder verschiedenen Halogenatomen oder

36 R<sup>1</sup> und R<sup>2</sup> gemeinsam mit dem Stickstoffatom, an welches sie gebunden sind, für einen gegebenenfalls einfach bis mehrfach, gleich oder verschieden substituierten, gesättigten 5-bis 7-gliedrigen Heterocyclus stehen, der gegebenenfalls ein weiteres Heteroatom, insbesondere Stickstoff, Sauerstoff oder Schwefel enthalten kann, wobei als Substituenten infrage kommen: jeweils geradkettiges oder verzweigtes Alkyl oder Hydroxyalkyl mit jeweils 1 bis 4 Kohlenstoffatomen.

12 Besonders bevorzugt sind Verbindungen der Formel (I), bei welchen

40 Besonders bevorzugt sind Verbindungen, bei denen  
 X für Sauerstoff oder Schwefel steht,  
 R für Wasserstoff, Methyl, Ethyl, Neopentyl, Cyclohexyl oder Phenyl steht und  
 Y für Wasserstoff, Methyl, Ethyl, n- oder i-Propyl, n-, i-, s- oder t-

R für Wasserstoff, Methyl, Ethyl, n-oder i-Propyl, n-, i-, s- oder t-R<sup>1</sup> und R<sup>2</sup> unabhängig voneinander jeweils für Wasserstoff, Methyl, Ethyl, n-oder i-Propyl, n-, i-, s- oder t-Butyl, n-oder i-Pentyl, n-oder i-Hexyl, n-oder i-Heptyl, n-oder i-Octyl, Allyl, n-oder i-Butenyl, n-oder i-Propoxy- oder i-Butoxy- oder i-Pentoxy- oder i-Hexoxy- oder i-Heptoxy- oder i-Octoxy- Hydroxymethyl, Hydroxyethyl, Methoxyethyl, Ethoxyethyl, Propoxy-

45 Pentenyl, Propargyl, n- oder i-Butinyl, Hydroxyethyl, Hydroxypropyl, Methoxyethyl, Ethoxyethyl, Propoxyc-  
ethyl, Butoxyethyl, Methoxypropyl, Ethoxypropyl, Propoxypropyl, Butoxypropyl, Hydroxyethoxyethyl, Dime-  
thyl, Butoxyethyl, Methoxycarbonylmethyl, Methoxycarbonylethyl, Methoxycarbo-

thoxyethyl, Dimethoxypropyl, Diethoxyethyl, Methoxycarbonylmethyl, Methoxycarbonylethyl, Methoxy-  
thoxyethyl, Ethoxycarbonylmethyl, Ethoxycarbonylethyl, Ethoxycarbonylethyl, Ethoxycarbonylpropyl, Propo-  
nylethyl, Ethoxycarbonylmethyl, Ethoxycarbonylethyl, Propoxycarbonylethyl, Propoxycarbonylpropyl, Dioxolanymethyl, Dioxolanylethyl, Dioxo-  
xycarbonylmethyl, Propoxycarbonylethyl, Propoxycarbonylpropyl, für jeweils gegebenenfalls ein-bis fünfach, gleich-

50 xycarbonylmethyl, 1-Propyl, 1-Butyl, 1-Pentyl, 1-Hexyl, 1-Heptyl, 1-Octyl, 1-Nonyl, 1-Decyl, 1-Eicosyl, 1-  
nonylmethyl, Dioxanyl methyl, Oxolanyl methyl, Oxolanylethyl, für jeweils gegebenenfalls ein- bis fünfach, gleich  
oder verschieden durch Fluor, Chlor, Brom, Methyl, Ethyl, n- oder i-Propyl, n-, i-, s- und/oder t-Butyl

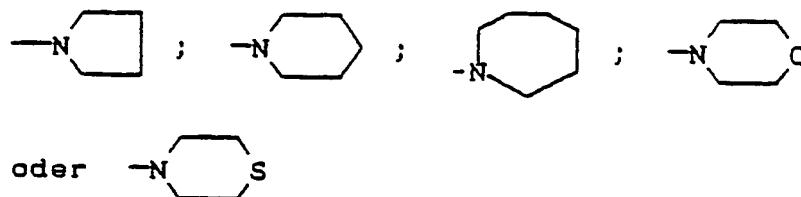
substituiertes Cyclopropyl, Cyclopropylmethyl, Cyclopropylethyl, Cyclopropylpropyl, Cyclopentyl, Cyclo-  
pentylmethyl, Cyclohexyl oder Cyclohexylmethyl oder für jeweils gegebenenfalls ein-bis dreifach, gleich oder  
nichtmethyl, Benzyl oder Phenylethyl steht, wobei als Substituenten jeweils infrage

verschieden substituiertes Phenyl, Benzyl oder Phenylethyl steht, wobei als Substituenten  
kommen: Fluor, Chlor, Brom, Cyano, Nitro, Methyl, Ethyl, n-oder i-Propyl, n-, i-, s-oder t-Butyl, Methoxy,  
Ethoxy, Methylthio, Trifluormethyl, Trifluormethoxy, Trifluormethylthio, Methoxycarbonyl, Ethoxycarbonyl  
oder Methoximinomethyl oder

R<sup>1</sup> und R<sup>2</sup> gemeinsam mit dem Stickstoffatom, an welches sie gebunden sind, für einen gegebenenfalls ein-

bis dreifach, gleich oder verschieden substituierten Heterocycloste der Formel

5



10

stehen, wobei als Substituenten infrage kommen: Methyl, Ethyl oder Hydroxymethyl.

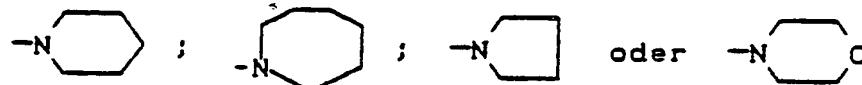
Ganz besonders bevorzugt sind Verbindungen der Formel (I), bei welchen

X für Sauerstoff oder Schwefel steht.

R für Wasserstoff, Methyl oder Ethyl steht und

- 15 R<sup>1</sup> und R<sup>2</sup> unabhängig voneinander jeweils für Wasserstoff; Methyl, Ethyl, n-oder i-Propyl, n-, i-, s-oder t-Butyl, n-oder i-Pentyl, n-oder i-Hexyl, Allyl, n-oder i-Butenyl, n-oder i-Pentenyl, Propargyl, n-oder i-Butinyl, Hydroxyethyl, Hydroxypropyl, Methoxyethyl, Methoxypropyl, Ethoxyethyl, Ethoxypropyl, Hydroxyethoxyethyl, Dimethoxyethyl, Diethoxyethyl, Methoxycarbonylmethyl, Methoxycarbonylethyl, Methoxycarbonylpropyl, Ethoxycarbonylmethyl, Ethoxycarbonylethyl, Ethoxycarbonylpropyl, Propoxycarbonylmethyl, Propoxycarbonylethyl, Propoxycarbonylpropyl, Dioxolanylmethyl, Dioxolanylethyl, Dioxanylme-  
20 thyl, Oxolanylmethyl, Oxolanelthyl, Cyclopropylmethyl, Dichlorcyclopropylmethyl, Dimethylcyclopropylme-thyl, Dichlordimethylcyclopropylmethyl, Cyclopentyl, Cyclohexyl oder Cyclohexylmethyl steht oder  
R<sup>1</sup> und R<sup>2</sup> gemeinsam mit dem Stickstoffatom, an welches sie gebunden sind, für einen gegebenenfalls ein- bis dreifach, gleich oder verschiedenen substituierten Heterocycloste der Formel

25



30

stehen,

wobei als Substituenten infrage kommen: Methyl, Ethyl, Hydroxymethyl.

Halogen bedeutet auch in den Zusammensetzungen Fluor, Chlor, Brom und Iod, insbesondere Fluor, Chlor oder Brom, wenn nicht anders definiert.

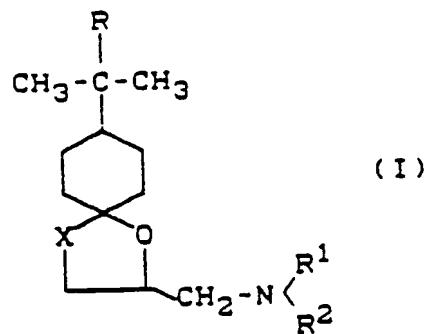
- 35 Bevorzugte erfindungsgemäße Verbindungen sind auch Additionsprodukte aus Säuren und denjenigen Aminomethylheterocyclen der Formel (I), in denen die Substituenten X, R, R<sup>1</sup> und R<sup>2</sup> die Bedeutungen haben, die bereits für diese Substituenten genannt wurden.

Zu den Säuren die addiert werden können, gehören vorzugsweise Halogenwasserstoffsäuren, wie z.B. Chlorwasserstoffsäure und Bromwasserstoffsäure, insbesondere Chlorwasserstoffsäure, ferner Phosphorsäure, Salpetersäure, mono-, bi- und trifunktionelle Carbonsäuren und Hydroxycarbonsäuren, wie z.B. Essigsäure, Maleinsäure, Bernsteinsäure, Fumarsäure, Weinsäure, Zitronensäure, Salicylsäure, Sorbinsäure und Milchsäure, und Sulfonsäuren, wie p-Toluolsulfonsäure und 1,5-Naphthalindisulfonsäure und ferner Saccharin.

- 40 Im einzelnen seien außer den bei den Herstellungsbeispielen genannten Verbindungen die folgenden Aminomethylheterocyclen der allgemeinen Formel (I) genannt:

50

55



15

20	$\mathbf{R}$	$\mathbf{X}$	$-\mathbf{N}^{\mathbf{R}^1} \backslash \mathbf{R}^2$
----	--------------	--------------	--

---

25	$\mathbf{CH}_3$	$\mathbf{S}$	$-\mathbf{NH}-\mathbf{CH}_2-\mathbf{CH} \backslash \begin{array}{c} \mathbf{OCH}_3 \\ \diagup \\ \diagdown \end{array}$
----	-----------------	--------------	---

30	$\mathbf{CH}_3$	$\mathbf{S}$	$-\mathbf{NH}-\mathbf{CH}_2-\mathbf{CH} \begin{array}{c} \mathbf{O} \\ \diagup \\ \diagdown \end{array}$
----	-----------------	--------------	--

35	$\mathbf{CH}_3$	$\mathbf{S}$	$-\mathbf{CH}_3 \begin{array}{c}   \\ -\mathbf{N}-\mathbf{CH}_2-\mathbf{CH} \begin{array}{c} \mathbf{O} \\ \diagup \\ \diagdown \end{array} \end{array}$
----	-----------------	--------------	--

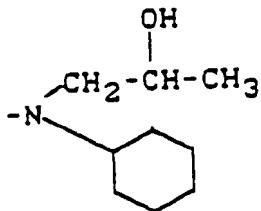
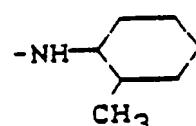
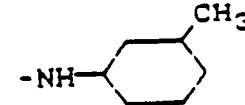
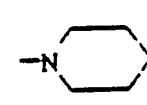
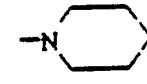
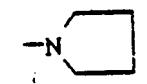
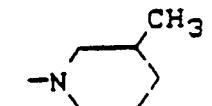
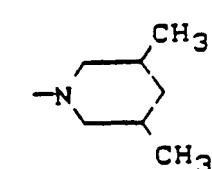
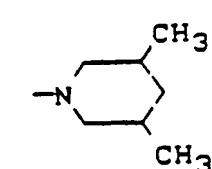
40

45

50

55

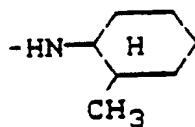
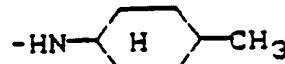
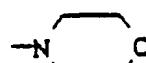
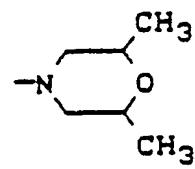
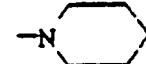
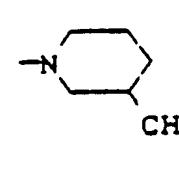
R	X	$-N<\begin{matrix} R^1 \\ R^2 \end{matrix}$
5		
10	CH <sub>3</sub>	S
		$\begin{matrix} C_3H_7-n \\   \\ -N-CH_2-CH< \\ OCH_3 \\ OCH_3 \end{matrix}$
15	CH <sub>3</sub>	S
		$\begin{matrix} CH_3 & C_2H_5 \\   &   \\ -N-CH_2-CH-CH_2-CH_3 \end{matrix}$
20	CH <sub>3</sub>	S
		$\begin{matrix} CH_3 \\   \\ C_3H_7-n \\   \\ -N-CH_2-CH-CH_3 \end{matrix}$
25	CH <sub>3</sub>	S
		$\begin{matrix} C_3H_7-n \\   \\ -N-CH_2-CH_2-O-CH_2-CH_2-OH \end{matrix}$
30	CH <sub>3</sub>	S
		$\begin{matrix} -NH- \\   \\ \text{Cyclohexyl} \end{matrix}$
35	CH <sub>3</sub>	S
		$\begin{matrix} CH_3 \\   \\ -N- \\   \\ \text{Cyclohexyl} \end{matrix}$
40	CH <sub>3</sub>	S
		$\begin{matrix} C_3H_7-n \\   \\ -N-CH_2- \\   \\ \text{Cyclopentyl} \end{matrix}$
45		
50		
55		

R	X	$-N^{\text{R}1}\text{---}\text{R}2$
5 CH <sub>3</sub>	S	
10 CH <sub>3</sub>	S	
15 CH <sub>3</sub>	S	
20 CH <sub>3</sub>	S	
25 C <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	S	
30 C <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	S	
35 C <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	S	
40 C <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	S	
45 C <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	S	
50		
55		

	R	X	$-N<^{R^1}_{R^2}$
5			
10	C <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	S	
15	C <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	S	
20	C <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	S	
25	C <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	S	
30	C <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	S	$-NH-CH_2-C\equiv CH$
35	C <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	S	$-NH-CH_2-CH_2-C\equiv CH$
40	C <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	S	$-N<^{CH_3}_{-CH_2-C\equiv CH}$
45			
50			
55			

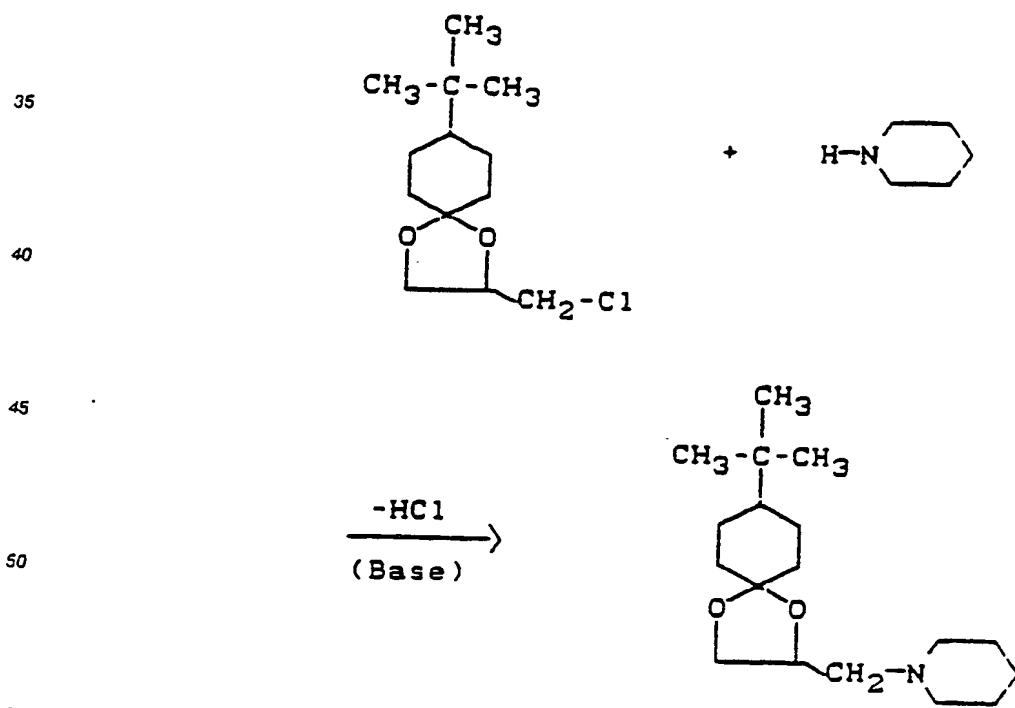
R	X	$-N< \begin{array}{c} R^1 \\   \\ CH_2 - CH_2 - OH \\   \\ CH \\   \\ CH_3 \end{array}$
5 CH <sub>3</sub>	O	$-N< \begin{array}{c} CH_2 - CH_2 - OH \\   \\ CH \\   \\ CH_3 \end{array}$
10 CH <sub>3</sub>	O	$-N< \begin{array}{c} CH_3 \\   \\ C_2H_5 \end{array}$
15 CH <sub>3</sub>	O	$-N< \begin{array}{c} CH_3 \\   \\ C_3H_7-n \end{array}$
20 CH <sub>3</sub>	O	$-N< \begin{array}{c} CH_3 \\   \\ C_4H_9-n \end{array}$
25 CH <sub>3</sub>	O	$-N< \begin{array}{c} C_2H_5 \\   \\ C_4H_9-n \end{array}$
30 CH <sub>3</sub>	O	$-N< \begin{array}{c} CH_3 \\   \\ CH_2 - \text{C}_6H_5 \end{array}$
35 CH <sub>3</sub>	O	$-N< \begin{array}{c} CH_3 \\   \\ CH_2 - \text{C}_6H_5 \end{array}$
40 CH <sub>3</sub>	O	$-N< \begin{array}{c} CH_3 \\   \\ CH_2 - CH_2 - \text{C}_6H_5 \end{array}$
45		
50		
55		

R	X	$\text{-N}^{\text{R}}_{\text{R}^2}^{\text{R}^1}$
5		
CH <sub>3</sub>	O	
10		
CH <sub>3</sub>	O	
15		
CH <sub>3</sub>	O	
20		
CH <sub>3</sub>	O	
25		
CH <sub>3</sub>	O	
30		
CH <sub>3</sub>	O	
35		
CH <sub>3</sub>	O	
40		
CH <sub>3</sub>	O	
45		
CH <sub>3</sub>	O	
50		
55		

R	X	$\text{-N}^{\text{R}}_{\text{R}^2}^{\text{R}^1}$
5		
CH <sub>3</sub>	O	
10		
CH <sub>3</sub>	O	
15		
	O	
20		
	O	
25		
	O	
30		
	O	
35		
	O	
40		
	O	
45		
50		
55		

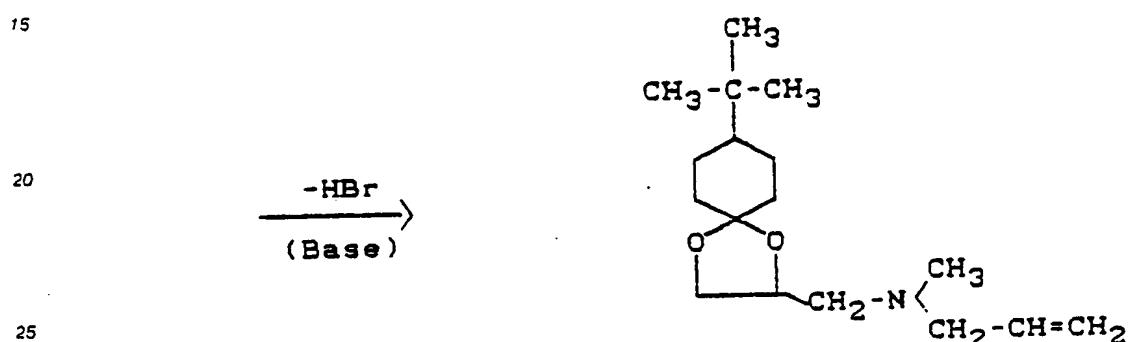
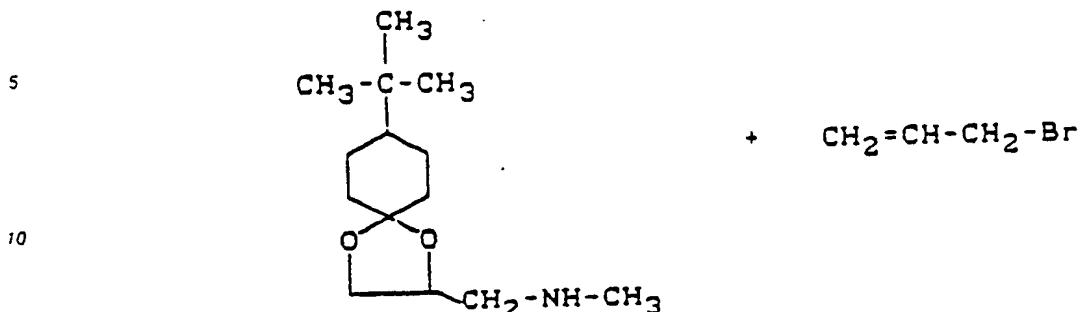
R	X	$-N^< \begin{matrix} R^1 \\ R^2 \end{matrix}$
5 10 	O	
15 	O	
20 	O	
25 	O	

Verwendet man beispielsweise 8-t-Butyl-2-chlormethyl-1,4-dioxaspiro[4,5]decan und Piperidin als Ausgangsstoffe, so lässt sich der Reaktionsablauf des erfindungsgemäßen Verfahrens (a) durch das folgende Formelschema darstellen:



Verwendet man beispielsweise 8-t-Butyl-2-methylaminomethyl-1,4-dioxaspiro[4,5]decan und Allylbromid als Ausgangsstoffe, so lässt sich der Reaktionsablauf des erfindungsgemäßen Verfahrens (b) durch das

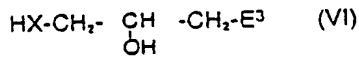
folgende Formelschema darstellen:



Die zur Durchführung des erfindungsgemäßen Verfahrens (a) als Ausgangsstoffe benötigten substituierten Heterocyclen sind durch die Formel (II) allgemein definiert. In dieser Formel (II) stehen R und X vorzugsweise für diejenigen Reste, die bereits im Zusammenhang mit der Beschreibung der erfindungsgemäßen Stoffe der Formel (I) für diese Substituenten genannt wurden.



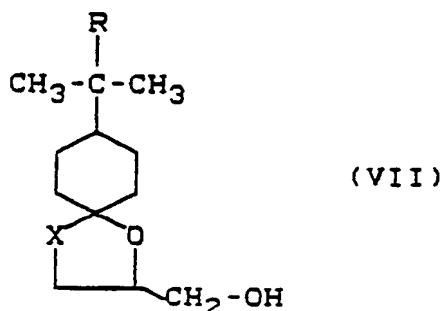
50 in welcher R die oben angegebene Bedeutung hat,  
mit allgemein bekannten Alkoholen der Formel (VI).



55 in welcher  
X die oben angegebene Bedeutung hat und  
E<sup>3</sup> für Halogen oder Hydroxy steht,  
gegebenenfalls in Gegenwart eines Verdünnungsmittels, wie beispielsweise Toluol, und gegebenenfalls in

Gegenwart eines sauren Katalysators, wie beispielsweise *p*-Toluolsulfonsäure, bei Temperaturen zwischen 40 °C und 150 °C cyclisiert und gegebenenfalls in den Fällen, wo E<sup>3</sup> in Formel (VI) für eine Hydroxygruppe steht, in einer 2. Stufe die so erhältlichen Hydroxymethylheterocyclen der Formel (VII),

5



10

15

(VII)

20

in welcher  
 X und R die oben angegebene Bedeutung haben,  
 mit gegebenenfalls substituierten Alkyl- oder Arylsulfonylhalogeniden der Formel (VIII),

25

Z-SO<sub>2</sub>-Hal (VIII)

30

in welcher  
 Hal für Halogen, insbesondere für Chlor steht und  
 Z für gegebenenfalls durch Halogen, wie Fluor, Chlor, Brom oder Iod substituiertes Alkyl oder für  
 gegebenenfalls durch Alkyl mit 1 bis 4 Kohlenstoffatomen substituiertes Aryl, wie insbesondere Methyl,  
 Trifluormethyl oder 4-Methylphenyl steht,  
 gegebenenfalls in Gegenwart eines Verdünnungsmittels, wie beispielsweise Diethylether, und gegebenen-  
 falls in Gegenwart eines Säurebindermittels, wie beispielsweise Pyridin oder Triethylamin, bei Temperaturen  
 zwischen - 20 °C und + 100 °C umsetzt.

35

Die dabei erhältlichen geometrischen Isomeren lassen sich entweder als Gemische im erfindungs-  
 gemäßigen Verfahren (a) weiter umsetzen oder mit üblichen Trennmethoden (Chromatographie, Kristallisa-  
 tion) auftrennen.

40

Die zur Durchführung des erfindungsgemäßigen Verfahrens (a) weiterhin als Ausgangsstoffe benötigten  
 Amine sind durch die Formel (III) allgemein definiert. In dieser Formel (III) stehen R<sup>1</sup> und R<sup>2</sup> vorzugsweise  
 für diejenigen Reste, die bereits im Zusammenhang mit der Beschreibung der erfindungsgemäßigen Stoffe  
 der Formel (I) für diese Substituenten genannt wurden.

Die Amine der Formel (III) sind allgemein bekannte Verbindungen der organischen Chemie.

45

Die zur Durchführung des erfindungsgemäßigen Verfahrens (b) als Ausgangsstoffe benötigten Aminome-  
 thylheterocyclen sind durch die Formel (Ia) allgemein definiert. In dieser Formel (Ia) stehen X, R und R<sup>1</sup>  
 vorzugsweise für diejenigen Reste, die bereits im Zusammenhang mit der Beschreibung der erfindungs-  
 gemäßigen Stoffe der Formel (I) für diese Substituenten genannt wurden.

Die Aminomethylheterocyclen der Formel (Ia) sind erfindungsgemäßige Verbundungen und erhältlich mit  
 Hilfe des erfindungsgemäßigen Verfahrens (a).

50

Die zur Durchführung des erfindungsgemäßigen Verfahrens (b) weiterhin als Ausgangsstoffe benötigten  
 Alkylierungsmittel sind durch die Formel (IV) allgemein definiert. In dieser Formel (IV) steht R<sup>2-1</sup> vorzugs-  
 weise für jeweils geradkettiges oder verzweigtes Alkyl mit 1 bis 12 Kohlenstoffatomen, Alkenyl mit 3 bis 8  
 Kohlenstoffatomen, Alkinyl mit 3 bis 8 Kohlenstoffatomen, Hydroxalkyl mit 2 bis 6 Kohlenstoffatomen,  
 Alkoxyalkyl oder Dialkoxyalkyl mit 1 bis 6 Kohlenstoffatomen oder Hydroxyalkoxyalkyl mit 2 bis 6  
 Kohlenstoffatomen in den einzelnen Alkylteilen, für Alkoxy carbonylalkyl mit 1 bis 6 Kohlenstoffatomen je  
 Alkoxy-bzw. Alkylteil, für jeweils geradkettiges oder verzweigtes Dioxolanylalkyl, Dioxanylalkyl oder Oxola-  
 nylalkyl mit jeweils 1 bis 4 Kohlenstoffatomen im Alkylteil, für jeweils gegebenenfalls im Cycloalkylteil  
 einfach bis mehrfach, gleich oder verschieden substituiertes Cycloalkyl oder Cycloalkylalkyl mit jeweils 3  
 bis 7 Kohlenstoffatomen im Cycloalkylteil und gegebenenfalls 1 bis 4 Kohlenstoffatomen im geradkettigen  
 oder verzweigten Alkylteil, wobei als Substituenten jeweils infrage kommen: Halogen, jeweils geradkettiges  
 oder verzweigtes Alkyl, Alkoxy, Halogenalkyl oder Halogenalkoxy mit jeweils 1 bis 4 Kohlenstoffatomen und  
 gegebenenfalls 1 bis 9 gleichen oder verschiedenen Halogenatomen; außerdem für jeweils gegebenenfalls  
 einfach bis mehrfach, gleich oder verschieden im Arylteil substituiertes Arylalkyl oder Arylalkenyl mit jeweils

6 bis 10 Kohlenstoffatomen im Arylteil und bis zu 6 Kohlenstoffatomen im geradkettigen oder verzweigten Alkyl- bzw. Alkenylteil, wobei als Arylsubstituenten jeweils infrage kommen: Halogen, Cyano, Nitro, jeweils geradkettiges oder verzweigtes Alkyl, Alkoxy, Alkylothio, Halogenalkyl, Halogenalkoxy, Halogenalkylthio, Alkoxykarbonyl oder Alkoximinoalkyl mit jeweils 1 bis 4 Kohlenstoffatomen in den einzelnen Alkylteilen und zugegebenfalls 1 bis 9 gleichen oder verschiedenen Halogenatomen.



**R<sup>2</sup>** steht ganz besonders bevorzugt für Methyl, Ethyl, n-oder i-Propyl, n-, i-, s-oder t-Butyl, n-oder i-Pentyl, n-oder i-Hexyl, Allyl, n-oder i-Butenyl, n-oder i-Pentenyl, Propargyl, n-oder i-Butinyl, Hydroxyethyl, Hydroxypropyl, Methoxyethyl, Methoxypropyl, Ethoxyethyl, Ethoxypropyl, Hydroxyethoxyethyl, Dimethoxyethoxyethyl, Diethoxyethyl, Methoxycarbonylmethyl, Methoxycarbonylethyl, Methoxycarbonylpropyl, Ethoxycarbonyl, Diethoxycarbonyl, Ethoxycarbonylmethyl, Ethoxycarbonylethyl, Ethoxycarbonylpropyl, Propoxycarbonylmethyl, Propoxycarbonylethyl, Propoxycarbonylpropyl, Dioxolanylmethyl, Dioxolanylethyl, Dioxanylpropyl, Cyclopropylmethoxypropyl, Cyclopropylpropyl, Cyclopentyl, Cyclohexyl oder Cyclohexylmethyl.

<sup>30</sup> E<sup>2</sup> steht vorzugsweise für Halogen, insbesondere für Chlor, Brom oder Iod oder für jeweils gegebenenfalls durch Halogen, wie Fluor, Chlor, Brom oder Iod substituiertes Alkylsulfonyloxy, Alkoxyssulfonyloxy mit jeweils 1 bis 4 Kohlenstoffatomen oder für gegebenenfalls durch z.B. Alkyl mit 1 bis 4 Kohlenstoffatomen substituiertes Arylsulfonyloxy, wie beispielsweise Methansulfonyloxy, Methoxysulfonyloxy oder p-Toluolsulfonyloxy.

Die Alkylierungsmittel der Formel (IV) sind ebenfalls allgemein bekannte Verbindungen der organischen Chemie oder erhältlich in Analogie zu allgemein bekannten Verfahren.

35 Chemie oder erhältlich in Analogie zu allgemein bekannten Verfahren.  
 Als Verdünnungsmittel zur Durchführung der erfundungsgemäßen Verfahren (a) und (b) kommen inerte organische Lösungsmittel oder wässrige Systeme infrage. Hierzu gehören insbesondere aliphatische oder aromatische, gegebenenfalls halogenierte Kohlenwasserstoffe, wie beispielsweise Benzin, Benzol, Toluol, Xylool, Chlorbenzol, Petrolether, Hexan, Cyclohexan, Dichlormethan, Chloroform, Tetrachlorkohlenstoff, Ether,  
 40 wie Diethylether, Dioxan, Tetrahydrofuran oder Ethylenglykoldimethyl oder -diethylether; Ketone, wie Aceton oder Butanon; Nitrile, wie Acetonitril oder Propionitril; Amide, wie Dimethylformamid, Dimethylacetamid, N-Methylformanilid, N-Methylpyrrolidon oder Hexamethylphosphorsäuretriamid; Ester, wie Essigsäureethylester; Sulfoxide, wie Dimethylsulfoxid oder Alkohole, wie Methanol, Ethanol oder Propanol.

Die erfindungsgemäßen Verfahren (a) und (b) können gegebenenfalls auch in einem Zweiphasensystem, wie beispielsweise Wasser/Toluol oder Wasser/Dichlormethan, gegebenenfalls in Gegenwart eines Phasentransferkatalysators, durchgeführt werden. Als Beispiele für solche Katalysatoren seien genannt: Tetrabutylammoniumiodid, Tetrabutylammoniumbromid, Tributyl-methylphosphoniumbromid, Trimethyl-Tetrabutylammoniumiodid, Dibenzylidimethyl-ammoniummethylsulfat, Dimethyl-C<sub>1</sub>/C<sub>2</sub>-alkyl-benzylammoniumchlorid, Dibenzylidimethyl-ammoniumchlorid, Tetrabutylammoniumhydroxid, 15-Krone-5, 18-Krone-6, Triethylbenzylammoniumchlorid oder Trimethylbenzylammoniumchlorid. Es ist auch möglich die erfindungsgemäßen Verfahren (a) und (b) ohne Zusatz eines Lösungsmittels durchzuführen.

55 ohne Zusatz eines Lösungsmittels durchzuführen.  
Als Säurebindemittel zur Durchführung der erfindungsgemäßen Verfahren (a) und (b) kommen alle üblicherweise verwendbaren anorganischen und organischen Basen infrage. Vorzugsweise verwendet man Alkalimetallhydroxide, -alkoholate, -carbonate oder -hydrogencarbonate, wie beispielsweise Natriumhydroxid, Natriummethylat, Natriumethylat, Natriumcarbonat oder Natriumhydrogencarbonat oder auch tertiäre Amine, wie beispielsweise Triethylamin, N,N-Dimethylanilin, Pyridin, 4-(N,N-Dimethylamino)-pyridin, Diaza-bicyclooctan (DABCO), Diazabicyclononen (DBN) oder Diazabicycloundecen (DBU).

Es ist auch möglich, die als Reaktionsteilnehmer verwendeten Amine der Formeln (III) bzw. (Ia) in

entsprechendem Überschuß gleichzeitig als Säurebindemittel einzusetzen.

Die Reaktionstemperaturen können bei der Durchführung der erfindungsgemäßen Verfahren (a) und (b) in einem größeren Bereich variiert werden. Im allgemeinen arbeitet man bei Temperaturen zwischen + 20 °C und + 200 °C, vorzugsweise bei Temperaturen zwischen 80 °C und + 180 °C.

5 Die erfindungsgemäßen Verfahren (a) und (b) werden im allgemeinen bei Normaldruck durchgeführt. Es ist jedoch auch möglich unter erhöhtem Druck im Bereich zwischen 1 und 10 atm zu arbeiten. Die Arbeitsweise unter erhöhtem Druck empfiehlt sich insbesondere, wenn ein oder mehrere Reaktionsteilnehmer bei Normaldruck und der erforderlichen Reaktionstemperatur gasförmig vorliegen.

10 Zur Durchführung des erfindungsgemäßen Verfahrens (a) setzt man pro Mol an substituiertem Heterocycus der Formel (II) im allgemeinen 1,0 bis 10,0 Mol, vorzugsweise 1,0 bis 5,0 Mol an Amin der Formel (III) und gegebenenfalls 1,0 bis 10,0 Mol, vorzugsweise 1,0 bis 5,0 Mol an Säurebindemittel, und gegebenenfalls 0,1 bis 1,0 Mol an Phasentransferkatalysator ein.

15 Zu Durchführung des erfindungsgemäßen Verfahrens (b) setzt man pro Mol an Aminomethylheterocycus der Formel (Ia) im allgemeinen 1,0 bis 5,0 Mol, vorzugsweise 1,0 bis 2,0 Mol an Alkylierungsmittel der Formel (IV) und 1,0 bis 5,0 Mol, vorzugsweise 1,0 bis 2,0 Mol an Säurebindemittel, und gegebenenfalls 0,1 bis 1,0 Mol an Phasentransferkatalysator ein.

20 Die Reaktionsdurchführung, Aufarbeitung und Isolierung der Reaktionsprodukte der Formel (I) erfolgt in beiden Fällen nach üblichen Methoden.

Zur Herstellung von Säureadditionsalzen der Verbindungen der Formel (I) kommen vorzugsweise 25 folgende Säuren infrage: Halogenwasserstoffsäuren, wie z.B. Chlorwasserstoffsäure und Bromwasserstoffsäure, insbesondere Chlorwasserstoffsäure, ferner Phosphorsäure, Salpetersäure, Schwefelsäure, mono-, bi- und tri-funktionelle Carbonsäuren und Hydroxycarbonsäuren, wie z.B. Essigsäure, Maleinsäure, Bernsteinsäure, Fumarsäure, Weinsäure, Zitronensäure, Salicylsäure, Sorbinsäure, Milchsäure, und Sulfosäuren, wie z.B. p-Toluolsulfonsäure und 1,5-Naphthalindisulfonsäure und außerdem Saccharin.

30 Die Säureadditionsalze der Verbindungen der Formel (I) können in einfacher Weise nach üblichen Salzbildungsmethoden, wie z.B. durch Lösen einer Verbindung der Formel (I) in einem geeigneten inertem Lösungsmittel und Hinzufügen der Säure, wie z.B. Chlorwasserstoffsäure, erhalten werden und in bekannter Weise, z.B. durch Abfiltrieren, isoliert und gegebenenfalls durch Waschen mit einem inertem organischen Lösungsmittel gereinigt werden.

35 Die erfindungsgemäßen Wirkstoffe weisen eine starke Wirkung gegen Schädlinge auf und können zur Bekämpfung von unerwünschten Schadorganismen praktisch eingesetzt werden. Die Wirkstoffe sind für den Gebrauch u.a. als Pflanzenschutzmittel insbesondere als Fungizide geeignet.

Fungizide Mittel im Pflanzenschutz werden eingesetzt zur Bekämpfung von Plasmodiophoromycetes, Oomycetes, Chytridiomycetes, Zygomycetes, Ascomycetes, Basidiomycetes, Deuteromycetes.

40 Beispielhaft aber nicht begrenzend seien einige Erreger von pilzlichen Erkrankungen, die unter die oben aufgezählten Oberbegriffe fallen, genannt:

Pythium-Arten, wie beispielsweise Pythium ultimum;

Phytophthora-Arten, wie beispielsweise Phytophthora infestans;

45 Pseudoperonospora-Arten, wie beispielsweise Pseudoperonospora humuli oder Pseudoperonospora cubensis;

Plasmopara-Arten, wie beispielsweise Plasmopara viticola;

Peronospora-Arten, wie beispielsweise Peronospora pisi oder P. brassicae;

Erysiphe-Arten, wie beispielsweise Erysiphe graminis;

Sphaerotheca-Arten, wie beispielsweise Sphaerotheca fuliginea;

45 Podosphaera-Arten, wie beispielsweise Podosphaera leucotricha;

Venturia-Arten, wie beispielsweise Venturia inaequalis;

Pyrenophora-Arten, wie beispielsweise Pyrenophora teres oder P. graminea

(Konidienform: Drechslera, Syn: Helminthosporium);

Cochliobolus-Arten, wie beispielsweise Cochliobolus sativus

50 (Konidienform: Drechslera, Syn: Helminthosporium);

Uromyces-Arten, wie beispielsweise Uromyces appendiculatus;

Puccinia-Arten, wie beispielsweise Puccinia recondita;

Tilletia-Arten, wie beispielsweise Tilletia caries;

Ustilago-Arten, wie beispielsweise Ustilago nuda oder Ustilago avenae;

55 Pellicularia-Arten, wie beispielsweise Pellicularia sasakii;

Pyricularia-Arten, wie beispielsweise Pyricularia oryzae;

Fusarium-Arten, wie beispielsweise Fusarium culmorum;

Botrytis-Arten, wie beispielsweise Botrytis cinerea;

Septoria-Arten, wie beispielsweise Septoria nodorum:

Leptosphaeria-Arten, wie beispielsweise Leptosphaeria nodorum:

Cercospora-Arten, wie beispielsweise Cercospora canescens:

Alternaria-Arten, wie beispielsweise Alternaria brassicae:

5 Pseudocercosporella-Arten, wie beispielsweise Pseudocercosporella herpotrichoides.

Die gute Pflanzenverträglichkeit der Wirkstoffe in den zur Bekämpfung von Pflanzenkrankheiten notwendigen Konzentrationen erlaubt eine Behandlung von oberirdischen Pflanzenteilen, von Pflanz- und Saatgut, und des Bodens.

Dabei lassen sich die erfindungsgemäßen Wirkstoffe mit besonders gutem Erfolg zur Bekämpfung von

10 Getreidekrankheiten, wie beispielsweise gegen den Erreger der Blattfleckenkrankheit der Gerste (Pyrenophora teres) oder gegen den Erreger der Blattfleckenkrankheit des Weizens (*Cochliobolus sativus*) sowie gegen Mehltau und Rostarten oder zur Bekämpfung von Krankheiten im Obst- und Gemüseanbau, wie beispielsweise gegen den Erreger des Apfelschorfes (*Venturia inaequalis*) einsetzen. Darüberhinaus zeigen die erfindungsgemäßen Wirkstoffe eine gute in-vitro-Wirksamkeit.

15 Die Wirkstoffe können in Abhängigkeit von ihren jeweiligen physikalischen und/oder chemischen Eigenschaften in übliche Formulierungen übergeführt werden, wie Lösungen, Emulsionen, Suspensionen, Pulver, Schäume, Pasten, Granulate, Aerosole, Wirkstoff-imprägnierte Natur- und synthetische Stoffe, Feinstverkapselungen in polymeren Stoffen und in Hüllmassen für Saatgut, ferner in Formulierungen mit Brennsätzen, wie Räucherpatronen, -dosen, -spiralen u.ä., sowie ULV-Kalt- und Warmnebel-Formulierungen.

20 Diese Formulierungen werden in bekannter Weise hergestellt, z.B. durch Vermischen der Wirkstoffe mit Streckmitteln, also flüssigen Lösungsmitteln, unter Druck stehenden verflüssigten Gasen und/oder festen Trägerstoffen, gegebenenfalls unter Verwendung von oberflächenaktiven Mitteln, also Emulgiermitteln. Im Falle der Benutzung von Wasser als und/oder Dispergiermitteln und/oder schaumerzeugenden Mitteln. Als Streckmittel können z.B. auch organische Lösungsmittel als Hilfslösungsmittel verwendet werden. Als Flüssige Lösungsmittel kommen im wesentlichen in Frage: Aromaten, wie Xylool, Toluol, oder Alkylnaphthalen, chlorierte Aromaten oder chlorierte aliphatische Kohlenwasserstoffe, wie Chlorbenzole, Chlorethylen, chlorierte Aromaten oder chlorierte aliphatische Kohlenwasserstoffe, wie Cyclohexan oder Paraffine, z.B. Erdölfaktionen, oder Methylchlorid, aliphatische Kohlenwasserstoffe, wie Dimethylformamid und Dimethyl-Methylisobutylketon oder Cyclohexanon, stark polare Lösungsmittel, wie Dimethylformamid und Dimethylsulfoxid, sowie Wasser; mit verflüssigten gasförmigen Streckmitteln oder Trägerstoffen sind solche Flüssigkeiten gemeint, welche bei normaler Temperatur und unter Normaldruck gasförmig sind, z.B. Aerosol-Treibgase, wie Halogenkohlenwasserstoffe sowie Butan, Propan, Stickstoff und Kohlendioxid; als feste Trägerstoffe kommen in Frage: z.B. natürliche Gesteinsmehle, wie Kaoline, Tonerden, Talcum, Kreide, Quarz, Attapulgit, Montmorillonit oder Diatomeenerde und synthetische Gesteinsmehle, wie hochdisperse Quarz, Kieselsäure, Aluminiumoxid und Silikate; als feste Trägerstoffe für Granulate kommen in Frage; z.B. gebrochene und fraktionierte natürliche Gesteine wie Calcit, Marmor, Bims, Sepiolith, Dolomit sowie synthetische Granulate aus anorganischen und organischen Mehlen sowie Granulate aus organischem Material wie Sägemehl, Kokosnusschalen, Maiskolben und Tabakstengel; als Emulgier und/oder schaumerzeugende Mittel kommen in Frage: z.B. nichtionogene und anionische Emulgatoren, wie Polyoxyethylen-Fettsäure-Ester, Polyoxyethylen-Fettalkohol-Ether, z.B. Alkylarylpolyglykol-Ether, Alkylsulfonate, Alkylsulfate, Arylsulfonate sowie Eiweißhydrolysat; als Dispergiermittel kommen in Frage: z.B. Lignin-Sulfatblaugen und Methylcellulose.

35 Es können in den Formulierungen Haftmittel wie Carboxymethylcellulose, natürliche und synthetische pulvige, körnige oder latexförmige Polymere verwendet werden, wie Gummiarabicum, Polyvinylalkohol,

40 Polyvinylacetat, sowie natürliche Phospholipide, wie Kephaline und Lecithine, und synthetische Phospholipide. Weitere Additive können mineralische und vegetabile Öle sein.

45 Es können Farbstoffe wie anorganische Pigmente, z.B. Eisenoxid, Titanoxid, Ferrocyanblau und organische Farbstoffe, wie Alizarin-, Azo- und Metallphthalocyaninfarbstoffe und Spurenährstoffe wie Salze von Eisen, Mangan, Bor, Kupfer, Kobalt, Molybdän und Zink verwendet werden.

50 Die Formulierungen enthalten im allgemeinen zwischen 0,1 und 95 Gewichtsprozent Wirkstoff, vorzugsweise zwischen 0,5 und 90 %.

55 Die erfindungsgemäßen Wirkstoffe können in den Formulierungen in Mischung mit anderen bekannten Wirkstoffen vorliegen wie Fungizide, Insektizide, Akarizide und Herbizide sowie in Mischungen mit Düngemitteln und Wachstumsregulatoren.

Die Wirkstoffe können als solche, in Form ihrer Formulierungen oder den daraus bereiteten Anwendungsformen wie gebrauchsfertige Lösungen, Suspensionen, Spritzpulver, Pasten, lösliche Pulver, Stäubemittel und Granulate angewendet werden. Die Anwendung geschieht in üblicher Weise, z.B. durch Gießen, Verspritzen, Versprühen, Verstreuen, Verstäuben, Verschäumen, Bestreichen usw.. Es ist ferner

möglich, die Wirkstoffe nach dem Ultra-Low-Volume-Verfahren auszubringen oder die Wirkstoffzubereitung oder den Wirkstoff selbst in den Boden zu injizieren. Es kann auch das Saatgut der Pflanzen behandelt werden.

Bei der Behandlung von Pflanzenteilen können die Wirkstoffkonzentrationen in den Anwendungsformen in einem größeren Bereich variiert werden. Sie liegen im allgemeinen zwischen 1 und 0,0001 Gew.-%, vorzugsweise zwischen 0,5 und 0,001 %.

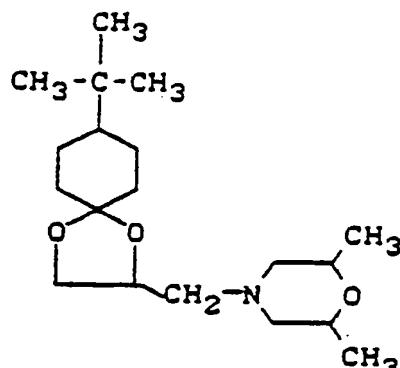
Bei der Saatgutbehandlung werden im allgemeinen Wirkstoffmengen von 0,001 bis 50 g je Kilogramm Saatgut, vorzugsweise 0,01 bis 10 g benötigt.

Bei Behandlung des Bodens sind Wirkstoffkonzentrationen von 0,00001 bis 0,1 Gew.-%, vorzugsweise von 0,0001 bis 0,02 % am Wirkungsort erforderlich.

### Herstellungsbeispiele

#### 15 Beispiel 1:

20



25  
30

#### (Verfahren a)

12,3 g (0,05 Mol) 8-t-Butyl-2-chlormethyl-1,4-dioxaspiro[4.5]decan (cis-trans-Gemisch) und 23 g (0,2 Mol) cis-2,6-Dimethylmorpholin werden zusammen 15 Stunden bei 130 ° C gerührt. Zur Aufarbeitung gibt man 100 ml Essigester zur erkalteten Reaktionsmischung, wäscht fünfmal mit jeweils 50 ml Wasser, trocknet über Natriumsulfat und entfernt das Lösungsmittel im Vakuum.

35 Man erhält 15,8 g (97 % der Theorie) an 8-t-Butyl-2-(2,6-dimethylmorpholin-4-yl-methyl)-1,4-dioxaspiro-[4,5] dekan als Öl vom Brechungsindex  $n_D^{20}$  : 1,4756, welches laut gaschromatographischer Analyse überwiegend als cis/cis- und cis/trans-Diastereomerengemisch vorliegt.

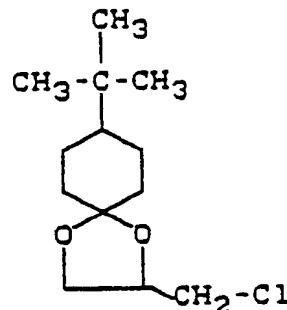
40

#### Herstellung der Ausgangsverbindung

45

50

55

Beispiel II-1:

100g (0,648 Mol) 4-t-Butylcyclohexanon, 143,2 g (1,296 Mol) 3-Chlor-1,2-propandiol und 12,3 g (0,0648 Mol) p-Toluolsulfonsäure werden in 1 l Toluol 15 Stunden über einem Wasserabscheider unter Rückfluß erhitzt. Das erkalte Reaktionsgemisch wird fünfmal mit jeweils 300 ml gesättigter wässriger Natriumhydro-

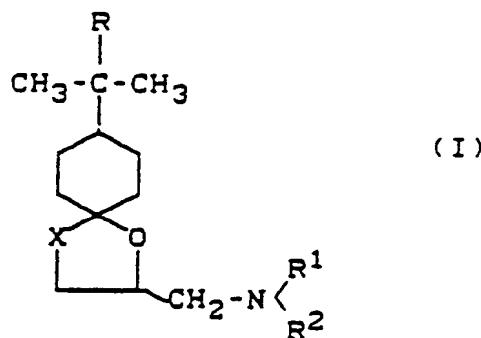
gencarbonatlösung gewaschen, über Natriumsulfat getrocknet und im Vakuum vom Lösungsmittel befreit.

Man erhält 159,5 g (99 % der Theorie) an 8-t-Butyl-2-chlormethyl-1,4-dioxaspiro[4.5]decan vom Bre-

chungsindex  $n_D^{20}$  : 1.4774, welches laut gaschromatographischer Analyse und Protonenkerndresonanzspek-

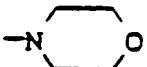
trum als cis-trans-(55:45)-Gemisch vorliegt.

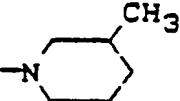
In entsprechender Weise und gemäß den allgemeinen Angaben zur Herstellung erhält man die folgenden Aminomethylheterocyclen der allgemeinen Formel (I):

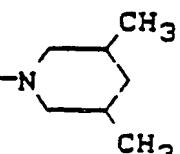


	Bsp. Nr.	X	R	$-N< \begin{array}{c} R^1 \\   \\ R^2 \end{array}$	physikalische Eigenschaften
--	-------------	---	---	--	--------------------------------

20      2      0      CH<sub>3</sub>             $n_{D}^{20}: 1,4830$

25      3      0      CH<sub>3</sub>             $n_{D}^{20}: 1,4833$

30      4      0      CH<sub>3</sub>             $n_{D}^{20}: 1,4801$

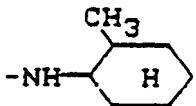
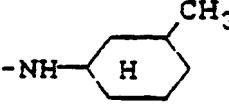
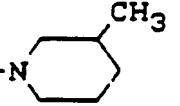
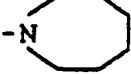
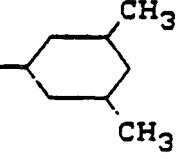
35      5      0      CH<sub>3</sub>             $n_{D}^{20}: 1,4767$

45

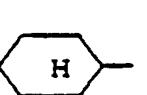
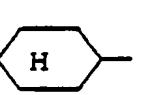
50

55

Bsp. Nr.	X	R	$-N< \begin{matrix} R^1 \\ R^2 \end{matrix}$	physikalische Eigenschaften
5				
6	O	CH <sub>3</sub>		$n_D^{20}: 1,4867$
10				
7	O	CH <sub>3</sub>		$n_D^{20}: 1,4856$
15				
8	O	CH <sub>3</sub>		$n_D^{20}: 1,4861$
20				
9	S	CH <sub>3</sub>	$-NH-CH_2-CH(CH_3)_2$	$n_D^{20}: 1,4916$
25				
10	S	CH <sub>3</sub>	$-NH-CH_2-CH(CH_3)_2$	$n_D^{20}: 1,5298$
30				
11	S	CH <sub>3</sub>		$n_D^{20}: 1,5012$
35				
12	S	CH <sub>3</sub>		Fp. 43° C
40				
45				
50				
55				

Bsp. Nr.	X	R	$\begin{array}{c} R^1 \\   \\ -N \\ \backslash \\ R^2 \end{array}$	physikalische Eigenschaften
5				
13	S	CH <sub>3</sub>		Fp. 48° C
10				
14	S	CH <sub>3</sub>	$-NH-(CH_2)_3-OC_2H_5$	$n_D^{20}: 1,4959$
15	O	CH <sub>3</sub>		$n_D^{20}: 1,4872$
20				
16	O	CH <sub>3</sub>		$n_D^{20}: 1,4872$
25				
17	O	CH <sub>3</sub>		$n_D^{20}: 1,4808$
30				
18	O	C <sub>2</sub> H <sub>5</sub>		$n_D^{20}: 1,4851$
35				
19	O	C <sub>2</sub> H <sub>5</sub>		$n_D^{20}: 1,4814$
40				
20	O	C <sub>2</sub> H <sub>5</sub>		$n_D^{20}: 1,4886$
45				
21	O	C <sub>2</sub> H <sub>5</sub>		$n_D^{20}: 1,4793$
50				
55				

Bsp. Nr.	X	R	$-N<^R_2^R^1$	physikalisch Eigenschaften
5				
22	O	C <sub>2</sub> H <sub>5</sub>		n <sub>D</sub> <sup>20</sup> : 1,4847
10				
23	O	C <sub>2</sub> H <sub>5</sub>		n <sub>D</sub> <sup>20</sup> : 1,4785
15				
24	O	CH <sub>3</sub>		n <sub>D</sub> <sup>20</sup> : 1,5088
20				
25	25	O		n <sub>D</sub> <sup>20</sup> : 1,5088
30				
26	O	CH <sub>3</sub>		n <sub>D</sub> <sup>20</sup> : 1,4858
35				
27	O	CH <sub>3</sub>		n <sub>D</sub> <sup>20</sup> : 1,4874
40				
28	O	CH <sub>3</sub>		n <sub>D</sub> <sup>20</sup> : 1,4829
45				
29	O			Fp. 37-48° C
50				

Bsp. Nr.	X	R	$\begin{array}{c} R^1 \\   \\ -N \\   \\ R^2 \end{array}$	physikalische Eigenschaften
5				
10	30	O		$n_D^{20}: 1,4993$
15	31	O		$n_D^{20}: 1,4958$
20	32	O	CH <sub>3</sub>	$n_D^{20}: 1,4660$
25	33	O	CH <sub>3</sub>	$n_D^{20}: 1,4700$
30	34	O	CH <sub>3</sub>	$n_D^{20}: 1,4672$
35	35	O	CH <sub>3</sub>	$n_D^{20}: 1,4757$
40	36	O	CH <sub>3</sub>	$n_D^{20}: 1,4662$
45	37	O	CH <sub>3</sub>	$n_D^{20}: 1,4653$
50	38	O	CH <sub>3</sub>	$n_D^{20}: 1,4663$

Bsp. Nr.	X	R	$-N<^R_2^1$	physikalische Eigenschaften
5				
39	O	CH <sub>3</sub>	$-N<^C_2H_5_2$ $(CH_2)_3-CH_3$	n <sub>D</sub> <sup>20</sup> : 1,4649
10				
40	O	CH <sub>3</sub>	$-N<^CH_3_2$ $CH_2-$ benzene	n <sub>D</sub> <sup>20</sup> : 1,5079
15				
41	O		$-N<^C_2H_5_2$ $C_2H_5$	n <sub>D</sub> <sup>20</sup> : 1,4893
20				
42	O	CH <sub>3</sub>	-NH-(CH <sub>2</sub> ) <sub>2</sub> -OCH <sub>3</sub>	n <sub>D</sub> <sup>20</sup> : 1,4692
25				
43	O	CH <sub>3</sub>	-NH-CH <sub>3</sub>	Kp. 116-120° C/ 0,9 mm
30				
44	O	CH <sub>3</sub>	$-N<^C_2H_5_2$ $(CH_2)_2-CH_3$	n <sub>D</sub> <sup>20</sup> : 1,4662
35				
45	O	(CH <sub>3</sub> ) <sub>3</sub> C-CH <sub>2</sub> -	$-N<^C_2H_5_2$ $C_2H_5$	n <sub>D</sub> <sup>20</sup> : 1,4733
40				
46	O	C <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	$-N<^C_2H_5_2$	n <sub>D</sub> <sup>20</sup> : 1,4651
45				
47	O	CH <sub>3</sub>	$-NH<^CH_3_2$ $CH_2-$ benzene	n <sub>D</sub> <sup>20</sup> : 1,5050
50				

Bsp. Nr.	X	R	$\begin{array}{c} \text{R}^1 \\   \\ -\text{N}-\text{CH}_2-\text{CH}=\text{CH}-\text{C}_6\text{H}_5 \\   \\ \text{CH}_3 \end{array}$	physikalische Eigenschaften
-------------	---	---	--	--------------------------------

5

48      O      CH<sub>3</sub>       $\begin{array}{c} \text{CH}_3 \\ | \\ -\text{N}-\text{CH}_2-\text{CH}=\text{CH}-\text{C}_6\text{H}_5 \end{array}$        $n_{\text{D}}^{20}: 1,5254$

10

49      O      CH<sub>3</sub>       $\begin{array}{c} -\text{NH}-\text{CH}_2-\text{CH}_2-\text{C}_6\text{H}_5 \end{array}$        $n_{\text{D}}^{20}: 1,5123$

15

50      O      CH<sub>3</sub>       $\begin{array}{c} \text{CH}_3 \\ | \\ -\text{N}-\text{C}_6\text{H}_4-\text{CH}_3 \end{array}$

20

51      O      CH<sub>3</sub>       $\begin{array}{c} \text{CH}_3 \\ | \\ -\text{NH}-\text{CH}-\text{C}_6\text{H}_5 \end{array}$        $n_{\text{D}}^{20}: 1,4836$

30

52      O      C<sub>2</sub>H<sub>5</sub>       $\begin{array}{c} -\text{NH}-\text{C}_6\text{H}_5 \end{array}$        $n_{\text{D}}^{20}: 1,4871$

35

53      O      C<sub>2</sub>H<sub>5</sub>       $\begin{array}{c} \text{CH}_3 \\ | \\ -\text{NH}-\text{C}_6\text{H}_5 \end{array}$        $n_{\text{D}}^{20}: 1,4838$

40

54      O      CH<sub>3</sub>       $\begin{array}{c} \text{OH} \\ | \\ -\text{N}(\text{CH}_2-\text{CH}-\text{CH}_3)_2 \end{array}$        $n_{\text{D}}^{20}: 1,4788$

45

55      O      C<sub>2</sub>H<sub>5</sub>       $\begin{array}{c} -\text{NH}-(\text{CH}_2)_2-\text{OCH}_3 \end{array}$        $n_{\text{D}}^{20}: 1,4720$

50

55

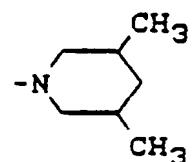
Bsp. Nr.	X	R	$\begin{array}{c} R^1 \\   \\ -N- \\   \\ R^2 \end{array}$	physikalisch Eigenschaft n
5				
56	O	C <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	-NH-(CH <sub>2</sub> ) <sub>3</sub> -CH <sub>3</sub>	n <sub>D</sub> <sup>20</sup> : 1,4708
10				
57	O	CH <sub>3</sub>	$\begin{array}{c} CH_3 \\   \\ -N-(CH_2)_2-\text{C}_6\text{H}_5 \end{array}$	Kp. 157° C
15				
58	O	CH <sub>3</sub>	$\begin{array}{c} CH_3 & CH_3 \\   &   \\ -N-\text{CH}-\text{CH}-\text{C}_6\text{H}_5 \end{array}$	
20				
25				
59	O	CH <sub>3</sub>	$\begin{array}{c} CH_3 & CH_3 \\   &   \\ -N-\text{CH}-\text{CH}-\text{C}_6\text{H}_5 \end{array}$	
30				
60	O	CH <sub>3</sub>	$\begin{array}{c} \text{CH}_2-\text{CH}(\text{C}_2\text{H}_5)_2 \\   \\ -N- \\   \\ \text{CH}_2-\text{COOCH}_3 \end{array}$	n <sub>D</sub> <sup>20</sup> : 1,4706
35				
61	O	CH <sub>3</sub>	$\begin{array}{c} (\text{CH}_2)_3-\text{OC}_2\text{H}_5 \\   \\ -N- \\   \\ (\text{CH}_2)_2-\text{CH}_3 \end{array}$	n <sub>D</sub> <sup>20</sup> : 1,4647
40				
62	O	CH <sub>3</sub>	$\begin{array}{c} \text{-N} \\   \\ \text{C}_6\text{H}_5 \end{array}$	
45				
50				
55				

Bsp. Nr.	X	R	$-N<^R_2^1$	physikalische Eigenschaften
-------------	---	---	-------------	--------------------------------

5

63	O	CH <sub>3</sub>		
----	---	-----------------	--	--

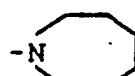
10



15

64	O	CH <sub>3</sub>		
----	---	-----------------	--	--

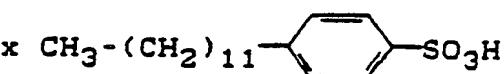
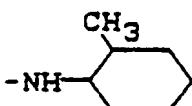
20



25

65	O	CH <sub>3</sub>		
----	---	-----------------	--	--

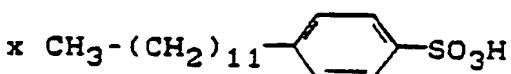
30



35

66	O	CH <sub>3</sub>		
----	---	-----------------	--	--

40



45

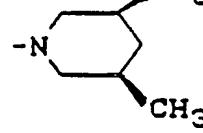
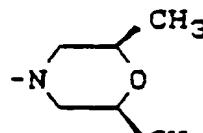
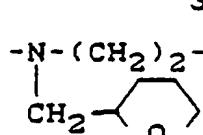
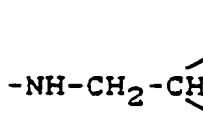
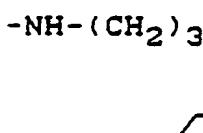
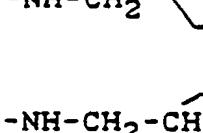
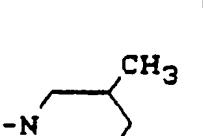
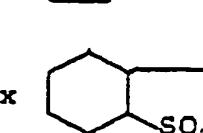
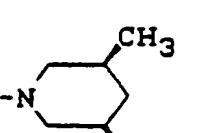
50

55

Bsp. Nr.	X	R	$\begin{array}{c} R^1 \\   \\ -N- \\   \\ R^2 \end{array}$	physikalisch Eigenschaften
5				
67	O	CH <sub>3</sub>	$\begin{array}{c} CH_3 \\   \\ -NH- \\   \\ H \end{array}$	
10				
			$\times CH_3-(CH_2)_{11}-\begin{array}{c} / \backslash \\ \text{C}_6\text{H}_4-\text{SO}_3\text{H} \end{array}$	
15				
68	O	CH <sub>3</sub>	$\begin{array}{c} CH_3 \\   \\ -N \\   \\ CH_3 \end{array}$	
20				
			$\times CH_3-(CH_2)_{11}-\begin{array}{c} / \backslash \\ \text{C}_6\text{H}_4-\text{SO}_3\text{H} \end{array}$	
25				
69	O	CH <sub>3</sub>	$\begin{array}{c} (\text{CH}_2)_3-\text{CH}_3 \\   \\ -N \\   \\ (\text{CH}_2)_3-\text{CH}_3 \end{array}$	Kp. 136° C
30				
70	O	C <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	$\begin{array}{c} (\text{CH}_2)_3-\text{CH}_3 \\   \\ -N \\   \\ \text{CH}_2-\text{COOCH}_3 \end{array}$	n <sub>D</sub> <sup>20</sup> : 1,4713
35				
71	O	CH <sub>3</sub>	$\begin{array}{c} \text{CH}_2-\text{CH}_2-\text{OCH}_3 \\   \\ -N \\   \\ (\text{CH}_2)_2-\text{CH}_3 \end{array}$	n <sub>D</sub> <sup>20</sup> : 1,4651
40				
72	O	C <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	$\begin{array}{c} \text{CH}_2-\text{CH}_2-\text{OCH}_3 \\   \\ -N \\   \\ \text{C}_2\text{H}_5 \end{array}$	n <sub>D</sub> <sup>20</sup> : 1,4685
45				
73	O	C <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	$\begin{array}{c} \text{CH}_2-\text{CH}_2-\text{OCH}_3 \\   \\ -N \\   \\ (\text{CH}_2)_2-\text{CH}_3 \end{array}$	n <sub>D</sub> <sup>20</sup> : 1,4687
50				
74	O	CH <sub>3</sub>	$\begin{array}{c} \text{CH}_2-\text{CH}_2-\text{OCH}_3 \\   \\ -N \\   \\ \text{C}_2\text{H}_5 \end{array}$	n <sub>D</sub> <sup>20</sup> : 1,4659

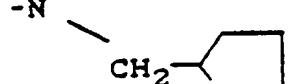
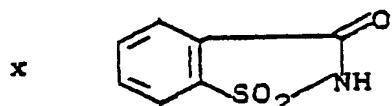
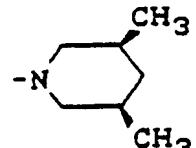
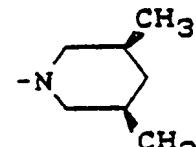
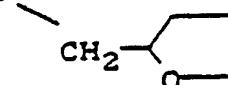
Bsp. Nr.	X	R	$-N<^R_1^R_2$	physikalische Eigenschaften
5				
75	S	CH <sub>3</sub>		$n_D^{20}$ : 1,4988
10				
76	S	CH <sub>3</sub>		Fp. 37-57° C
15				
77	S	CH <sub>3</sub>		$n_D^{20}$ : 1,4016
20				
78	S	CH <sub>3</sub>		<sup>1</sup> H-NMR *): 4,2-4,4 3,0-3,1 2,7-2,9
25				
79	S	CH <sub>3</sub>		$n_D^{20}$ : 1,5058
30				
80	S	CH <sub>3</sub>		$n_D^{20}$ : 1,4870
35				
81	S	CH <sub>3</sub>		<sup>1</sup> H-NMR *): 4,6-4,9 (m) 3,5-4,1 (m)
40				
45				
82	S	CH <sub>3</sub>		<sup>1</sup> H-NMR *): 4,6-4,9 (m) 4,05-4,1 (m) 3,05-3,8 (m)
50				
55				

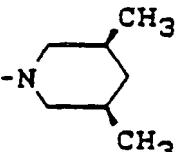
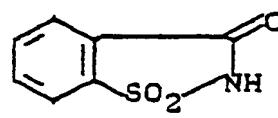
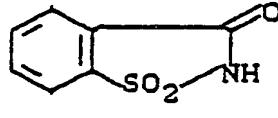
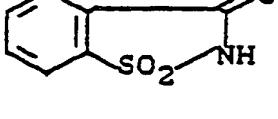
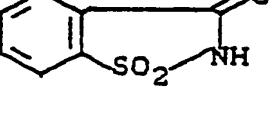
Bsp. Nr.	X	R	$-N< \begin{array}{c} R^1 \\   \\ R^2 \end{array}$	physikalische Eigenschaften
5 83	S	CH <sub>3</sub>	$-N< \begin{array}{c} \text{C}_6\text{H}_5 \\   \\ \text{C}_6\text{H}_5 \end{array}$	${}^1\text{H-NMR}^*)$ : 4,6-4,9 (m) 3,6-4,05 (m)
10 x				
15 84	S	CH <sub>3</sub>	$-NH-\text{CH}_2-\text{CH}(\text{C}_2\text{H}_5)_2$	${}^1\text{H-NMR}^*)$ : 4,6-4,8 (m) 3,5-3,7 (m) 3,1-3,3 (m) 2,7-2,9 (m)
20 85	S	CH <sub>3</sub>	$-NH-\text{C}_6\text{H}_5$	${}^1\text{H-NMR}^*)$ : 4,6-4,8 (m) 3,1-3,6 (m) 2,7-2,9 (m)
25 x				
30 86	S	CH <sub>3</sub>	$-NH-\text{CH}_2-\text{C}_6\text{H}_5$	${}^1\text{H-NMR}^*)$ : 4,6-4,8 (m) 3,5-3,7 (m) 3,0-3,3 (m) 2,7-2,9 (m)
35 x				
40 87	S	CH <sub>3</sub>	$-NH-\text{CH}_2-\text{CH}(\text{OC}_2\text{H}_5)_2$	${}^1\text{H-NMR}^*)$ : 4,95-5,05 (m) 4,6-4,8 (m) 3,5-3,9 (m) 3,1-3,5 (m)
45 x				
50 88	S	C <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	$-N< \begin{array}{c} \text{C}_2\text{H}_5 \\   \\ \text{C}_6\text{H}_5 \end{array}$	$n_D^{20}$ : 1,5058

Bsp. Nr.	X	R	$-N^{\text{R}^1}_{\text{R}^2}$	physikalische Eigenschaften
89	S	C <sub>2</sub> H <sub>5</sub>		n <sub>D</sub> <sup>20</sup> : 1,5027
90	S	C <sub>2</sub> H <sub>5</sub>		n <sub>D</sub> <sup>20</sup> : 1,5027
91	S	C <sub>2</sub> H <sub>5</sub>		n <sub>D</sub> <sup>20</sup> : 1,5027
92	S	C <sub>2</sub> H <sub>5</sub>		n <sub>D</sub> <sup>20</sup> : 1,4906
93	S	C <sub>2</sub> H <sub>5</sub>		n <sub>D</sub> <sup>20</sup> : 1,4969
94	S	C <sub>2</sub> H <sub>5</sub>		n <sub>D</sub> <sup>20</sup> : 1,5099
95	S	C <sub>2</sub> H <sub>5</sub>		n <sub>D</sub> <sup>20</sup> : 1,4958
96	S	C <sub>2</sub> H <sub>5</sub>		<sup>1</sup> H-NMR*: 4,6-4,9(m) 3,6-4,0(m)
97	S	C <sub>2</sub> H <sub>5</sub>		<sup>1</sup> H-NMR*: 4,6-4,9 3,5-3,9

Bsp. Nr.	X	R	$-N^{\text{R}^1}_{\text{R}^2}$	physikalische Eigenschaften
5				
10	98	S	C <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	<p><sup>1</sup>H-NMR*: 4,6-4,9 (m); 4,1-4,3 (m); 3,5-3,9 (m); 3,0-3,25 (m).</p>
15	99	S	C <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	<p><sup>1</sup>H-NMR*: 4,6-4,9 (m); 4,3-4,5 (m); 3,1-3,9 (m)</p>
20		x		
25	100	S	C <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	<p><sup>1</sup>H-NMR*: 3,15-3,9 (m); 4,6-4,8 (m); 4,95-5,05 (m)</p>
30		x		
35	101	S	C <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	<p><sup>1</sup>H-NMR*: 4,6-4,8 (m); 3,1-3,7 (m).</p>
40		x		
45	102	S	C <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	<p><sup>1</sup>H-NMR*: 4,5-4,8 (m); 3,5-3,75 (m); 3,0-3,25 (m); 2,7-2,9 (m);</p>
50		x		

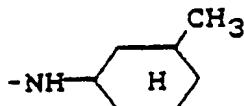
Bsp.	X	R	$-N< \begin{array}{c} R^1 \\   \\ R^2 \end{array}$	physikalische Eigenschaften
5				
103	S	C <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	$-NH-CH_2-CH(C_2H_5)_2$ 	<sup>1</sup> H-NMR*: 4,6-4,8 (m); 3,5-3,75 (m); 3,1-3,3 (m).
104	O	C <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	$-N<(CH_2)_2-CH_3$ 	n <sub>D</sub> <sup>20</sup> : 1,4802
105	O	H	$-N< \begin{array}{c} CH_3 \\   \\ C_6H_4 \\   \\ CH_3 \end{array}$	n <sub>D</sub> <sup>20</sup> : 1,4759
106	O	H	$-N< \begin{array}{c} CH_3 \\   \\ C_6H_4 \\   \\ O \\   \\ CH_3 \end{array}$	n <sub>D</sub> <sup>20</sup> : 1,4750
107	O	C <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	$-N<(CH_2)_2-CH_3$ 	n <sub>D</sub> <sup>20</sup> : 1,4760
108	O	H	$-NH-CH_2-CH(C_2H_5)_2$	n <sub>D</sub> <sup>20</sup> : 1,4666
109	O	H	$-NH(CH_2)_3-OC_2H_5$	n <sub>D</sub> <sup>20</sup> : 1,4678
110	O	H	$-NH-CH_2-\text{cyclohexyl}$	n <sub>D</sub> <sup>20</sup> : 1,4836

Bsp. Nr.	X	R	$-N<^{\text{R}1}_{\text{R}2}$	physikalische Eigenschaften
5				
111	O	H	$-\text{NH}-\text{CH}_2-\text{CH}(\text{CH}_3)_2$	$n_{\text{D}}^{20}: 1,4643$
10				
112	O	C <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	$\begin{array}{c} \diagup (\text{CH}_2)_2-\text{CH}_3 \\   \\ -\text{N} \end{array}$ 	$n_{\text{D}}^{20}: 1,5226$
15				
x				
20				
113	S	H	$\begin{array}{c} \text{CH}_3 \\   \\ -\text{N} \end{array}$ 	$n_{\text{D}}^{20}: 1,4900$
25				
114	S	H	$\begin{array}{c} \text{CH}_3 \\   \\ -\text{N} \end{array}$ 	$n_{\text{D}}^{20}: 1,5000$
30				
115	S	H	$\begin{array}{c} \diagup (\text{CH}_2)_2-\text{CH}_3 \\   \\ -\text{N} \end{array}$ 	$n_{\text{D}}^{20}: 1,5030$
35				
116	S	H	$-\text{NH}-\text{(CH}_2)_3\text{OC}_2\text{H}_5$	$n_{\text{D}}^{20}: 1,4913$
40				
117	S	H	$-\text{NH}-\text{CH}_2-\text{CH}(\text{C}_2\text{H}_5)_2$	$n_{\text{D}}^{20}: 1,4910$
45				
50				

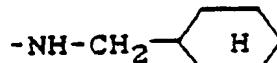
Bsp.	X	R	$\begin{array}{c} \text{-N} \swarrow \\ \text{R}^1 \\ \text{R}^2 \end{array}$	physikalische Eigenschaft n
5				
10	118	S	H	
				$n_{\text{D}}^{20}: 1,5179$
15			x	
20	119	O	H	$\text{-NH-}(\text{CH}_2)_3\text{-OC}_2\text{H}_5$
				$n_{\text{D}}^{20}: 1,5058$
25			x	
30	120	S	H	$\begin{array}{c} \text{-N} \swarrow \\ (\text{CH}_2)_2\text{-CH}_3 \\ \text{CH}_2 \text{---} \text{C} \text{---} \text{O} \end{array}$
				$n_{\text{D}}^{20}: 1,5260$
35			x	
40	121	S	H	$\text{-NH}(\text{CH}_2)_3\text{OC}_2\text{H}_5$
				$n_{\text{D}}^{20}: 1,5318$
45	122	S	H	$\text{-NH-CH}_2\text{-CH}(\text{C}_2\text{H}_5)_2$
				$n_{\text{D}}^{20}: 1,5272$
50			x	

Bsp. Nr.	X	R	$-N^{\text{R}^1}_{\text{R}^2}$	physikalische Eigenschaften
-------------	---	---	--------------------------------	--------------------------------

5

123	O	H		$n_D^{20}$ : 1,4808
-----	---	---	---	---------------------

10

124	S	H		$n_D^{20}$ : 1,5056
-----	---	---	---	---------------------

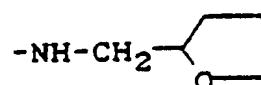
15

125	O	H		${}^1\text{H-NMR}^{\text{*}}$ : 4,5-4,6 (m) 4,0-4,1 (m) 3,6-3,7 (m) 3,3-3,5 (m)
-----	---	---	---	--

20

x  $\text{CH}_3-(\text{CH}_2)_{11}-\text{C}_6\text{H}_4-\text{SO}_3\text{H}$

25

126	O	$\text{CH}_3$		$n_D^{20}$ : 1,4812
-----	---	---------------	---	---------------------

30

127	S		$n_D^{20}$ : 1,5198
-----	---	---	---------------------

35

128	S		$n_D^{20}$ : 1,5065
-----	---	---	---------------------

40

129	S		$n_D^{20}$ : 1,5147
-----	---	---	---------------------

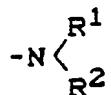
45

Bsp.	X	R	$\begin{array}{c} \text{R}^1 \\   \\ -\text{N}-\text{C} \\   \\ \text{R}^2 \end{array}$	physikalische Eigenschaften
5				
10	130	S		$-\text{NH}-\text{CH}_2-\text{CH}_(\text{C}_2\text{H}_5)_2$ $n_{\text{D}}^{20}: 1,5033$
15	131	S		$-\text{NH}-\text{CH}_2-\text{C}_6\text{H}_5$ $n_{\text{D}}^{20}: 1,5186$
20	132	S		$-\text{NH}-\text{C}_6\text{H}_5$ $n_{\text{D}}^{20}: 1,5242$
25	133	S		$-\text{NH}-\text{C}_6\text{H}_5\text{CH}_3$ $n_{\text{D}}^{20}: 1,5189$
30	134	S		$-\text{N}-\text{C}_6\text{H}_5$ ${}^1\text{H-NMR}^{(*)}: 4,6-4,8 (\text{m})$ $3,0-3,7 (\text{m})$
35		x		
40	135	S		$-\text{N}-\text{C}_6\text{H}_4-\text{CH}_(\text{CH}_3)_2$ ${}^1\text{H-NMR}^{(*)}: 4,5-4,7 (\text{m})$ $2,7-3,7 (\text{m})$
45	136	S		$-\text{N}-\text{C}_6\text{H}_4-\text{CH}_(\text{CH}_3)_2\text{O}$ ${}^1\text{H-NMR}^{(*)}: 4,6-4,9 (\text{m})$ $4,1-4,3 (\text{m})$ $3,0-3,9 (\text{m})$
50		x		
55				

Bsp. Nr.	X	R	$\text{-N} \begin{array}{c} \text{R}^1 \\ \diagdown \\ \diagup \\ \text{R}^2 \end{array}$	physikalische Eigenschaften	
5					
137	S		$\text{-NH-CH}_2\text{-CH}(\text{C}_2\text{H}_5)\text{C}_2\text{H}_5$	${}^1\text{H-NMR}^{(*)}$ : 4,6-4,7 (m) 3,5-3,6 (m) 2,7-3,3 (m)	
10					
138	S		$\text{-NH-CH}_2\text{-C}_6\text{H}_4\text{CH}_3$	${}^1\text{H-NMR}^{(*)}$ : 4,6-4,7 (m) 3,5-3,7 (m) 2,7-3,3 (m)	
15					
20	139	S		$\text{-NH-C}_6\text{H}_4\text{CH}_3$	${}^1\text{H-NMR}^{(*)}$ : 4,6-4,8 (m) 3,1-3,6 (m) 2,7-2,9 (m)
25	140	S		$\text{-NH-C}_6\text{H}_4\text{CH}_3$	${}^1\text{H-NMR}^{(*)}$ : 4,6-4,8 (m) 3,1-3,6 (m) 2,7-2,9 (m)
30					
35	141	O	H	$\text{-NH-CH}_2\text{-CH}(\text{OC}_2\text{H}_5)_2$	$n_D^{20}$ : 1,4120
40	142	O	CH <sub>3</sub>		$n_D^{20}$ : 1,5050
45	143	O	CH <sub>3</sub>		$n_D^{20}$ : 1,4803
50					

Bsp.	X	R	$-N< \begin{array}{c} R^1 \\   \\ R^2 \end{array}$	physikalische Eigenschaften
5				
10	144	O H		$n_{D}^{20}: 1,480$
15	145	O H		$n_{D}^{20}: 1,479$
20	146	O H		$n_{D}^{20}: 1,482$
25	147	O CH3		$n_{D}^{20}: 1,484$
30	148	O CH3		$n_{D}^{20}: 1,5221$
35	149	O CH3		$n_{D}^{20}: 1,4924$
40	150	S CH3		$n_{D}^{20}: 1,5070$
45	151	S CH3		$n_{D}^{20}: 1,5030$
50				
55				

Bsp. X R  
Nr.

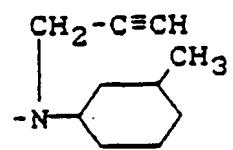


physikalische  
Eigenschaften

5

10

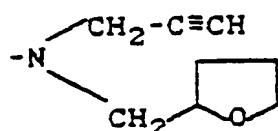
152 O CH<sub>3</sub>



n<sub>D</sub><sup>20</sup>: 1,4915

15

153 S CH<sub>3</sub>



n<sub>D</sub><sup>20</sup>: 1,5131

20

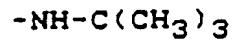
154 O CH<sub>3</sub>



n<sub>D</sub><sup>20</sup>: 1,4686

25

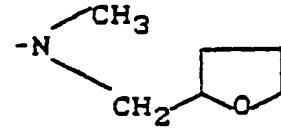
155 O H



n<sub>D</sub><sup>20</sup>: 1,4632

30

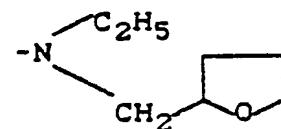
156 S CH<sub>3</sub>



n<sub>D</sub><sup>20</sup>: 1,5079

35

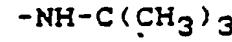
157 S CH<sub>3</sub>



n<sub>D</sub><sup>20</sup>: 1,5052

40

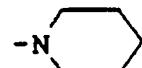
158 S CH<sub>3</sub>



Fp. 68° - 72° C

45

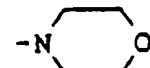
159 S H



n<sub>D</sub><sup>20</sup>: 1,5030

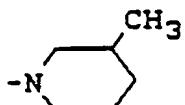
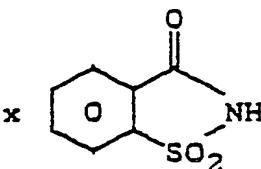
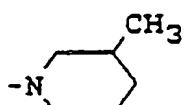
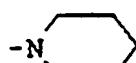
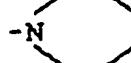
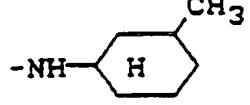
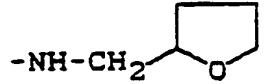
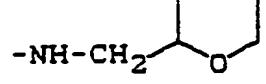
50

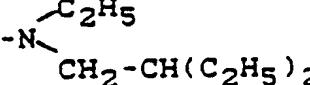
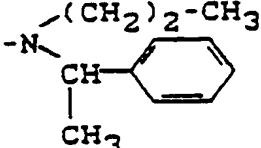
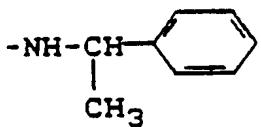
160 S H



n<sub>D</sub><sup>20</sup>: 1,508

55

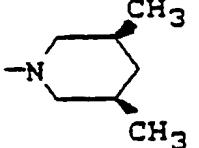
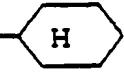
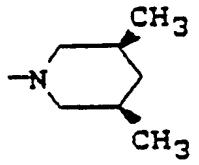
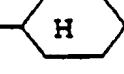
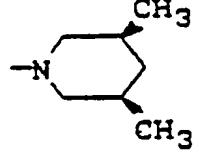
Bsp. Nr.	X	R	$-N<^{\text{R}1}_{\text{R}2}$	physikalische Eigenschaften
5				
10	161	S H		
15	162	S H		$n_D^{20}: 1.501$
20	163	S C <sub>2</sub> H <sub>5</sub>		$n_D^{20}: 1.507$
25	164	S C <sub>2</sub> H <sub>5</sub>		$n_D^{20}: 1.511$
30	165	S C <sub>2</sub> H <sub>5</sub>		$n_D^{20}: 1.503$
35	166	S C <sub>2</sub> H <sub>5</sub>		$n_D^{20}: 1.501$
40	167	O C <sub>2</sub> H <sub>5</sub>		$n_D^{20}: 1.484$
45				
50				
55				

Bsp. Nr.	X	R	$-N<^{\text{R}^1}_{\text{R}^2}$	physikalische Eigenschaften
168	S	H		$n_D^{20}: 1.501$
169	O	CH <sub>3</sub>		$n_D^{20}: 1.4674$
170	O	CH <sub>3</sub>		$n_D^{20}: 1.5043$
171	O	CH <sub>3</sub>		$n_D^{20}: 1.5088$
172	O	-CH <sub>2</sub> -C(CH <sub>3</sub> ) <sub>3</sub>	-NH-CH <sub>3</sub>	Kp. 140° C / 0.5 mbar
173	O	-CH <sub>2</sub> -C(CH <sub>3</sub> ) <sub>3</sub>	-NH-C <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	Kp. 143-145° C / 0.5 mbar
174	O		-NH-CH <sub>3</sub>	Kp. 172° C / 0.9 mbar
175	O		-NH-C <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	Kp. 178° C / 0.7 mbar

50

55

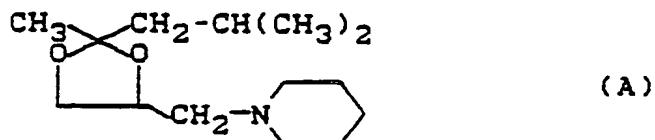
Bsp. Nr.	X	R	$\begin{array}{c} \text{R}^1 \\   \\ -\text{N}- \\   \\ \text{R}^2 \end{array}$	physikalische Eigenschaften
5				
10	176	O		$\begin{array}{c} \text{CH}_3 \\   \\ -\text{N}- \\   \\ (\text{CH}_2)_2-\text{CH}_3 \end{array}$ $n_{\text{D}}^{20}: 1.4898$
15	177	O		$\begin{array}{c} \text{CH}_3 \\   \\ -\text{N}- \\   \\ (\text{CH}_2)_3-\text{CH}_3 \end{array}$ $n_{\text{D}}^{20}: 1.4893$
20	178	O		$\begin{array}{c} \text{C}_2\text{H}_5 \\   \\ -\text{N}- \\   \\ (\text{CH}_2)_2-\text{CH}_3 \end{array}$ $n_{\text{D}}^{20}: 1.4885$
25	179	O		$\begin{array}{c} \text{C}_2\text{H}_5 \\   \\ -\text{N}- \\   \\ (\text{CH}_2)_3-\text{CH}_3 \end{array}$ $n_{\text{D}}^{20}: 1.4874$
30	180	O	$-\text{CH}_2-\text{C}(\text{CH}_3)_3$	$\begin{array}{c} \text{CH}_3 \\   \\ -\text{N}- \\   \\ (\text{CH}_2)_2-\text{CH}_3 \end{array}$ $n_{\text{D}}^{20}: 1.4722$
35	181	O	$-\text{CH}_2-\text{C}(\text{CH}_3)_3$	$\begin{array}{c} \text{CH}_3 \\   \\ -\text{N}- \\   \\ (\text{CH}_2)_3-\text{CH}_3 \end{array}$ $n_{\text{D}}^{20}: 1.4728$
40	182	O	$-\text{CH}_2-\text{C}(\text{CH}_3)_3$	$\begin{array}{c} \text{C}_2\text{H}_5 \\   \\ -\text{N}- \\   \\ (\text{CH}_2)_2-\text{CH}_3 \end{array}$ $n_{\text{D}}^{20}: 1.4732$
45	183	O	$-\text{CH}_2-\text{C}(\text{CH}_3)_3$	$\begin{array}{c} \text{C}_2\text{H}_5 \\   \\ -\text{N}- \\   \\ (\text{CH}_2)_3-\text{CH}_3 \end{array}$ $n_{\text{D}}^{20}: 1.4726$
50				

Bsp. Nr.	X	R	$-N^{\text{R}^1}_{\text{R}^2}$	physikalisch Eigenschaft n
5				
10	184	O	CH <sub>3</sub>	$-NH-(CH_2)_2-CH_3$ $n_D^{20}: 1.4684$
15	185	O	$-CH_2-C(CH_3)_3$	 $n_D^{20}: 1.4831$ (Diastereomer A)
20	186	O		 Fp. 68-70° C (Diastereomer A)
25	187	O		 $n_D^{20}: 1.4959$ (Diastereomer B)
30	188	O	CH <sub>3</sub>	$-N^{\text{CH}_2-\text{COOC}_2\text{H}_5}_{\text{CH}_2-\text{CH}(\text{C}_2\text{H}_5)_2}$ $n_D^{20}: 1.4668$
35	189	O	CH <sub>3</sub>	$-N^{\text{C}_2\text{H}_5}_{(\text{CH}_2)_3-\text{OC}_2\text{H}_5}$ $n_D^{20}: 1.4656$
40				
45				

Anwendungsbeispiele

Im den folgenden Anwendungsbeispiel wurden die nachstehend aufgeführten Verbindungen als Vergleichssubstanzen eingesetzt:

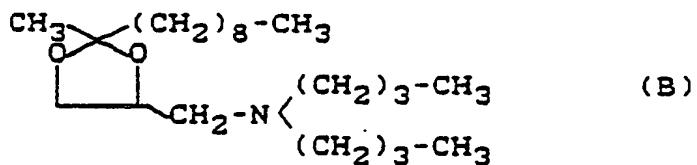
5



15

2-Isobutyl-2-methyl-4-(1-piperidinylmethyl)-1,3-dioxolan  
und

20



30

2-Methyl-2-nonyl-4-di-n-butylaminomethyl-1,3-dioxolan

35

(beide bekannt aus EP 97 822).

35

Beispiel A

Pyrenophora tères-Test (Gerste) / protektiv

40 Lösungsmittel: 100 Gewichtsteile Dimethylformamid

Emulgator: 0,25 Gewichtsteile Alkylarylpolyglykolether

Zur Herstellung einer zweckmäßigen Wirkstoffzubereitung vermischt man 1 Gewichtsteil Wirkstoff mit den angegebenen Mengen Lösungsmittel und Emulgator und verdünnt das Konzentrat mit Wasser auf die gewünschte Konzentration.

45 Zur Prüfung auf protektive Wirksamkeit besprüht man junge Pflanzen mit der Wirkstoffzubereitung taufeucht. Nach Abrocknen des Spritzbelages werden die Pflanzen mit einer Konidiensuspension von Pyrenophora tères besprüht. Die Pflanzen verbleiben 48 Stunden bei 20 ° C und 100 % relativer Luftfeuchtigkeit in einer Inkubationskabine.

50 Die Pflanzen werden in einem Gewächshaus bei einer Temperatur von ca. 20 °C und einer relativen Luftfeuchtigkeit von ca. 80 % aufgestellt.

7 Tage nach der Inokulation erfolgt die Auswertung.

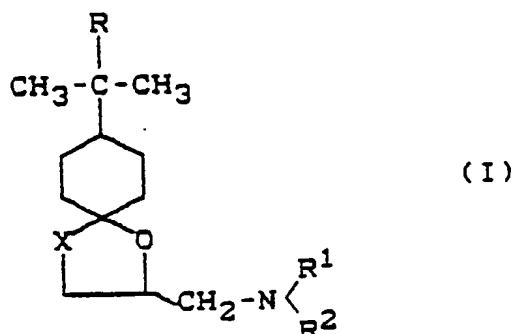
Eine deutliche Überlegenheit in der Wirksamkeit gegenüber dem Stand der Technik zeigen bei diesem Test z.B. die Verbindungen gemäß den Herstellungsbeispielen: 1, 2, 3, 4, 5, 6, 7 und 8.

55

**Ansprüche**

1. Aminomethylheterocyclen der allgemeinen Formel (I).

5



10

15

in welcher

X für Sauerstoff oder Schwefel steht,

20 R für Wasserstoff, Alkyl, oder für jeweils gegebenenfalls substituiertes Cyclohexyl oder Phenyl steht und R<sup>1</sup> und R<sup>2</sup> unabhängig voneinander jeweils für Wasserstoff, Alkyl, Alkenyl, Alkinyl, Alkoxyalkyl, Dialkoxyalkyl, Hydroxyalkyl, Hydroxyalkoxyalkyl, Alkoxy carbanylalkyl, Dioxolanylalkyl, Dioxanylalkyl, Oxolanylalkyl oder für jeweils gegebenenfalls substituiertes Cycloalkylalkyl, Cycloalkyl, Aralkyl, Aralkenyl oder Aryl stehen oder

25 R<sup>1</sup> und R<sup>2</sup> gemeinsam mit dem Stickstoffatom, an welches sie gebunden sind, für einen gegebenenfalls substituierten gesättigten Heterocyclus stehen, der gegebenenfalls weitere Heteroatome enthalten kann, deren Säureadditionssalze, deren geometrische und optische Isomere und Isomerengemische.

2. Aminomethylheterocyclen gemäß Anspruch 1, wobei in der Formel (I)

X für Sauerstoff oder Schwefel steht,

30 R für Wasserstoff, für geradkettiges oder verzweigtes Alkyl mit 1 bis 6 Kohlenstoffatomen oder für jeweils gegebenenfalls ein-bis dreifach, gleich oder verschieden durch Alkyl mit 1 bis 4 Kohlenstoffatomen und/oder Halogen substituiertes Phenyl oder Cyclohexyl steht und

35 R<sup>1</sup> und R<sup>2</sup> unabhängig voneinander jeweils für Wasserstoff; für jeweils geradkettiges oder verzweigtes Alkyl mit 1 bis 12 Kohlenstoffatomen, Alkenyl mit 3 bis 8 Kohlenstoffatomen, Alkinyl mit 3 bis 8 Kohlenstoffatomen, Hydroxyalkyl mit 2 bis 6 Kohlenstoffatomen, Alkoxyalkyl oder Dialkoxyalkyl mit jeweils 1 bis 6 Kohlenstoffatomen oder Hydroxyalkoxyalkyl mit 2 bis 6 Kohlenstoffatomen in den einzelnen Alkylteilen, für Alkoxy carbanylalkyl mit 1 bis 6 Kohlenstoffatomen je Alkoxy-bzw. Alkylteil, für jeweils geradkettiges oder verzweigtes Dioxolanylalkyl, Dioxanylalkyl oder Oxolanylalkyl mit jeweils 1 bis 4 Kohlenstoffatomen im Alkylteil oder für jeweils gegebenenfalls in Cycloalkyteil einfach bis mehrfach, gleich oder verschieden substituiertes Cycloalkyl oder Cycloalkylalkyl mit jeweils 3 bis 7 Kohlenstoffatomen im Cycloalkylteil und gegebenenfalls 1 bis 4 Kohlenstoffatomen im geradkettigen oder verzweigten Alkylteil stehen, wobei als Substituenten jeweils infrage kommen:

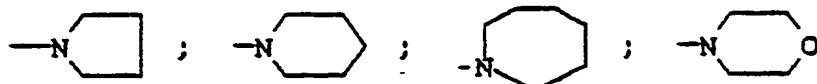
Halogen, jeweils geradkettiges oder verzweigtes Alkyl, Alkoxy, Halogenalkyl oder Halogenalkoxy mit jeweils 1 bis 4 Kohlenstoffatomen und gegebenenfalls 1 bis 9 gleichen oder verschiedenen Halogenatomen; außerdem für jeweils gegebenenfalls einfach bis mehrfach, gleich oder verschieden im Arylteil substituiertes Arylalkyl, Arylalkenyl oder Aryl mit jeweils 6 bis 10 Kohlenstoffatomen im Arylteil und gegebenenfalls bis zu 6 Kohlenstoffatomen im geradkettigen oder verzweigten Alkyl-bzw. Alkenylteil stehen, wobei als Arylsubstituenten jeweils infrage kommen:

50 Halogen, Cyano, Nitro, jeweils geradkettiges oder verzweigtes Alkyl, Alkoxy, Alkylthio, Halogenalkyl, Halogenalkoxy, Halogenalkylthio, Alkoxy carbonyl oder Alkoxyiminoalkyl mit jeweils 1 bis 4 Kohlenstoffatomen in den einzelnen Alkylteilen und gegebenenfalls 1 bis 9 gleichen oder verschiedenen Halogenatomen oder R<sup>1</sup> und R<sup>2</sup> gemeinsam mit dem Stickstoffatom, an welches sie gebunden sind, für einen gegebenenfalls einfach bis mehrfach, gleich oder verschieden substituierten, gesättigten 5-bis 7-gliedrigen Heterocyclus stehen, der gegebenenfalls ein weiteres Heteroatom, insbesondere Stickstoff, Sauerstoff oder Schwefel enthalten kann, wobei als Substituenten infrage kommen: jeweils geradkettiges oder verzweigtes Alkyl oder Hydroxyalkyl mit jeweils 1 bis 4 Kohlenstoffatomen, deren Säureadditionssalze, deren geometrische und optische Isomere und Isomerengemische.

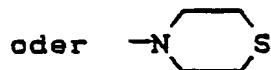
## 3. Aminomethylheterocyclen gemäß Anspruch 1, wobei in der Formel (I)

X für Sauerstoff oder Schwefel steht.

R für Wasserstoff, Methyl, Ethyl, Neopentyl, Cyclohexyl oder Phenyl steht und

R<sup>1</sup> und R<sup>2</sup> unabhängig voneinander jeweils für Wasserstoff, Methyl, Ethyl, n- oder i-Propyl, n-, i-, s- oder t-5 Butyl, n- oder i-Pentyl, n- oder i-Hexyl, n- oder i-Heptyl, n- oder i-Octyl, Allyl, n- oder i-Butenyl, n- oder i-  
Pentenyl, Propargyl, n- oder i-Butinyl, Hydroxyethyl, Hydroxypropyl, Methoxyethyl, Ethoxyethyl, Propoxylethyl,  
Butoxyethyl, Methoxypropyl, Ethoxypropyl, Propoxypropyl, Butoxypropyl, Hydroxyethoxyethyl, Dimethoxyethyl,  
Dimethoxypropyl, Diethoxyethyl, Methoxycarbonylmethyl, Methoxycarbonylethyl, Methoxycarbonylpropyl,10 Propoxycarbonylmethyl, Propoxycarbonylethyl, Propoxycarbonylpropyl, Dioxolanymethyl, Dioxolanylethyl, Dioxanylethyl, Dioxanymethyl, Dioxanylethyl, Oxolanymethyl, Oxolanylethyl, für jeweils gegebenenfalls ein-bis fünffach, gleich  
oder verschieden durch Fluor, Chlor, Brom, Methyl, Ethyl, n- oder i-Propyl, n-, i-, s- und/oder t-Butyl  
substituiertes Cyclopropyl, Cyclopropylmethyl, Cyclopropylethyl, Cyclopropylpropyl, Cyclopentyl, Cyclo-15 pentylmethyl, Cyclohexyl oder Cyclohexylmethyl oder für jeweils gegebenenfalls ein-bis dreifach, gleich oder  
verschieden substituiertes Phenyl, Benzyl oder Phenylethyl steht, wobei als Substituenten jeweils infrage  
kommen: Fluor, Chlor, Brom, Cyano, Nitro, Methyl, Ethyl, n- oder i-Propyl, n-, i-, s- oder t-Butyl, Methoxy,  
Ethoxy, Methylthio, Trifluormethyl, Trifluormethoxy, Trifluormethythio, Methoxycarbonyl, Ethoxycarbonyl  
oder Methoximinomethyl oder20 R<sup>1</sup> und R<sup>2</sup> gemeinsam mit dem Stickstoffatom, an welches sie gebunden sind, für einen gegebenenfalls  
ein-bis dreifach, gleich oder verschieden substituierten Heterocyclus der Formel

25

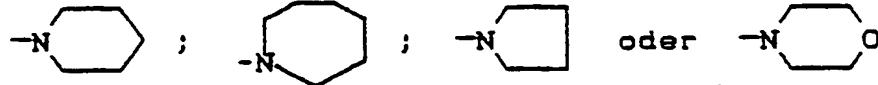


30

stehen, wobei als Substituenten infrage kommen: Methyl, Ethyl oder Hydroxymethyl, deren  
Säureadditionssalze, deren geometrische und optische Isomere und deren Isomerengemische.

## 4. Aminomethylheterocyclen gemäß Anspruch 1, wobei in der Formel (I)

X für Sauerstoff oder Schwefel steht.

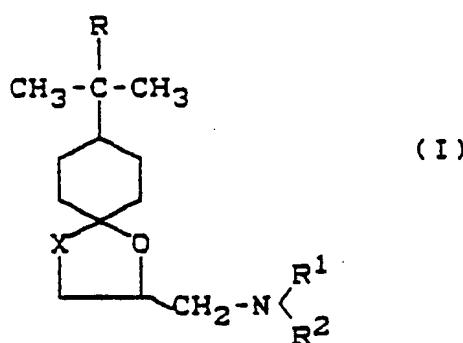
35 R für Wasserstoff, Methyl oder Ethyl steht und R<sup>1</sup> und R<sup>2</sup> unabhängig voneinander jeweils für Wasserstoff,  
Methyl, Ethyl, n- oder i-Propyl, n-, i-, s- oder t-Butyl, n- oder i-Pentyl, n- oder i-Hexyl, Allyl, n- oder i-Butenyl, n-  
oder i-Pentenyl, Propargyl, n- oder i-Butinyl, Hydroxyethyl, Hydroxypropyl, Methoxyethyl, Methoxypropyl,  
Ethoxyethyl, Ethoxypropyl, Hydroxyethoxyethyl, Dimethoxyethyl, Diethoxyethyl, Methoxycarbonylmethyl,  
Methoxycarbonylethyl, Methoxycarbonylpropyl, Ethoxycarbonylmethyl, Ethoxycarbonylethyl, Ethoxycarba-40 nyethyl, Ethoxycarbonylpropyl, Propoxycarbonylmethyl, Propoxycarbonylethyl, Propoxycarbonylpropyl, Dio-  
xolanymethyl, Dioxolanylethyl, Dioxanyl methyl, Dioxanylethyl, Oxolanymethyl, Oxolanylethyl, Cyclopropyl-  
methyl, Dichlorcyclopropylmethyl, Dimethylcyclopropylmethyl, Dichlordimethylcyclopropylmethyl, Cyclope-  
nyl, Cyclohexyl oder Cyclohexylmethyl steht oder45 R<sup>1</sup> und R<sup>2</sup> gemeinsam mit dem Stickstoffatom, an welches sie gebunden sind, für einen gegebenenfalls ein-  
bis dreifach, gleich oder verschieden substituierten Heterocyclus der Formel

50

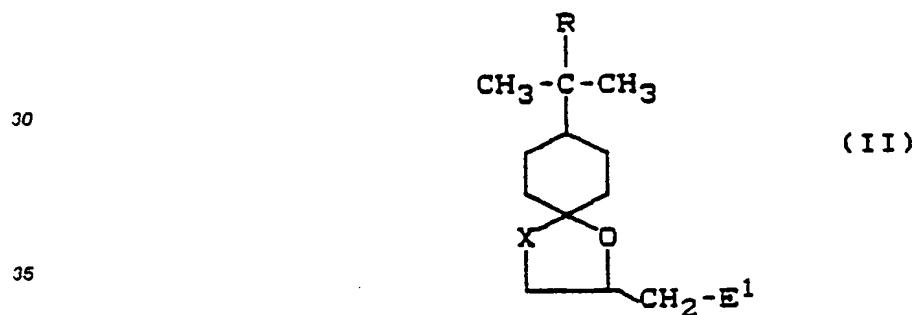
stehen,

wobei als Substituenten infrage kommen: Methyl, Ethyl, Hydroxymethyl, deren Säureadditionssalze,  
deren geometrische und optische Isomere und deren Isomerengemische.

55 5. Verfahren zur Herstellung von Aminomethylheterocyclen der allgemeinen Formel (I).



- in welcher  
 15 X für Sauerstoff oder Schwefel steht.  
 R für Wasserstoff, Alkyl oder für jeweils gegebenenfalls substituiertes Cyclohexyl oder Phenyl steht und  
 R<sup>1</sup> und R<sup>2</sup> unabhängig voneinander jeweils für Wasserstoff, Alkyl, Alkenyl, Alkinyl, Alkoxyalkyl, Dialkoxyalkyl,  
 Hydroxyalkyl, Hydroxyalkoxyalkyl, Alkoxy carbonylalkyl, Dioxolanylalkyl, Dioxanylalkyl, Oxolanylalkyl  
 oder für jeweils gegebenenfalls substituiertes Cycloalkylalkyl, Cycloalkyl, Aralkyl, Aralkenyl oder Aryl stehen  
 20 oder  
 R<sup>1</sup> und R<sup>2</sup> gemeinsam mit dem Stickstoffatom, an welches sie gebunden sind, für einen gegebenenfalls  
 substituierten gesättigten Heterocyclus stehen, der gegebenenfalls weitere Heteroatome enthalten kann,  
 sowie deren Säureadditionssalze, deren geometrische und optische Isomere und Isomerengemische,  
 dadurch gekennzeichnet, daß man  
 25 (a) substituierte Heterocyclen der Formel (II),

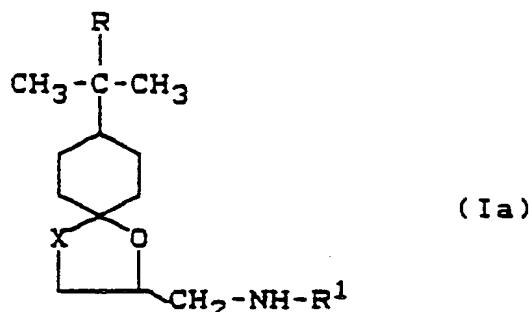


- in welcher  
 R und X die oben angegebene Bedeutung haben und  
 40 E<sup>1</sup> für eine elektronenanziehende Abgangsgruppe steht,  
 mit Aminen der Formel (III),



- in welcher  
 R<sup>1</sup> und R<sup>2</sup> die oben angegebene Bedeutung haben,  
 50 gegebenenfalls in Gegenwart eines Verdünnungsmittels und gegebenenfalls in Gegenwart eines  
 Säurebindermittels umsetzt, oder  
 (b) die nach Verfahren (a) erhältlichen Aminomethylheterocyclen der Formel (Ia),

5



10

15

in welcher  
 $\text{R}$ ,  $\text{R}^1$  und  $\text{X}$  die oben angegebene Bedeutung haben,  
mit Alkylierungsmitteln der Formel (IV),

$\text{R}^{2-1}-\text{E}^2$  (IV)

20

25

30

35

in welcher  
 $\text{R}^{2-1}$  für Alkyl, Alkenyl, Alkinyl, Alkoxyalkyl, Dialkoxyalkyl, Hydroxyalkyl, Hydroxyalkoxyalkyl, Alkoxy carbonylalkyl, Dioxolanylalkyl, Dioxanylalkyl, Oxolanylalkyl oder für jeweils gegebenenfalls substituiertes Cycloalkylalkyl, Cycloalkyl, Araalkyl oder Araalkenyl steht und  
 $\text{E}^2$  für eine elektronenanziehende Abgangsgruppe steht,  
gegebenenfalls in Gegenwart eines Verdünnungsmittels und gegebenenfalls in Gegenwart eines Säurebindermittels umsetzt und gegebenenfalls anschließend eine Säure addiert oder eine physikalische Trennmethode anschließt.  
6. Schädlingsbekämpfungsmittel, gekennzeichnet durch einen Gehalt an mindestens einem Aminomethylheterocyclus der Formel (I) nach den Ansprüchen 1 und 5.  
7. Verwendung von Aminomethylheterocyclen der Formel (I) nach den Ansprüchen 1 und 5 zur Bekämpfung von Schädlingen.  
8. Verfahren zur Bekämpfung von Schädlingen, dadurch gekennzeichnet, daß man Aminomethylheterocyclen der Formel (I) nach den Ansprüchen 1 und 5 auf Schädlinge und/oder ihren Lebensraum einwirken läßt.  
9. Verfahren zur Herstellung von Schädlingsbekämpfungsmitteln, dadurch gekennzeichnet, daß man Aminomethylheterocyclen der Formel (I) nach den Ansprüchen 1 und 5 mit Streckmitteln und/oder oberflächenaktiven Mitteln vermischt.

40

45

50

55



Europäisches  
Patentamt

# **EUROPÄISCHER RECHERCHENBERICHT**

**Nummer der Anmeldung**

EINSCHLÄGIGE DOKUMENTE			EP 88102676.9
Kategorie	Kennzeichnung des Dokuments mit Angabe, soweit erforderlich, der maßgeblichen Teile	Betrifft Anspruch	KLASSIFIKATION DER ANMELDUNG (Int. Cl. 4)
D, A	<u>EP - A1 - 0 097 822</u> (BAYER) * Ansprüche 1, 8, 9 * --	1, 6-9	C 07 D 405/06 C 07 D 413/06 C 07 D 411/06
A	<u>DE - A1 - 1 965 321</u> (EGYESÜLT GYOGYSZER) * Formel I * --	1	C 07 D 317/72 C 07 D 327/04 C 07 D 417/12 C 07 D 411/14
A	CHEMICAL ABSTRACTS, Band 90, Nr. 9, 26. Februar 1979, Columbus, Ohio, USA WOLINSKI, JERZY; CZERWINSKA, ANNA; "Search for anticholinergic compounds. VII. Synthesis of 2-aminomethyl-, 4-aminomethyl-, and 2,4-bis(aminomethyl)-1,3-dioxolanes." Seite 508, Spalte 1, Zusammenfassung Nr. 72 094q & Acta Pol. Pharm. 1978, 35 (3), 265-72 --	1	A 01 N 43/28 A 01 N 43/30
A	CHEMICAL ABSTRACTS, Band 88, Nr. 1, 2. Jänner 1978, Columbus, Ohio, USA KUTSUMA, TERUO; SUGAI, SABURO; IKAWA, HIROSHI; HASEGAWA, YOSHIHIRO; "1-(1,3-Dioxoan-4-ylmethyl)piperdinol derivatives" Seite 586, Spalte 1, Zusammenfassung Nr. 6 859a & Japan. Kokai 77-83 763 --	1	RECHERCHIERTE SACHGEBiete (Int. Cl. 4) C 07 D 405/00 C 07 D 413/00 C 07 D 411/00 C 07 D 417/00 C 07 D 317/00 C 07 D 327/00

Der vorliegende Recherchenbericht wurde für alle Patentansprüche erstellt.

Recherchenart	Abschlußdatum der Recherche	Prüfer
WIEN	05-04-1988	HAMMER

**KATEGORIE DER GENANNTEN DOKUMENTEN**

- X : v. n besonderer Bedeutung allein betrachtet
- Y : v. n besonderer Bedeutung in Verbindung mit einer anderen V. Röffentlichung derselben Kategorie
- A : chronologischer Hintergrund
- O : nichtschriftlich Offenbarung
- P : Zwischenliteratur
- T : der Erfindung zugrunde liegenden Theorien oder Grun

E : älteres Patentdokument, das jedoch erst am oder nach dem Anmeldedatum veröffentlicht worden ist  
D : in der Anmeldung angeführtes Dokument  
L : aus andern Gründen angeführtes Dokument

---

& : Mitglied der gleichen Patentfamilie, übereinstimmendes Dokument



EINSCHLÄGIGE DOKUMENTE			EP 88102676.9																								
Kategorie	Kennzeichnung des Dokuments mit Angabe, soweit erforderlich, der maßgeblichen Teile	Betrift Anspruch	KLASSIFIKATION DER ANMELDUNG (Int. Cl. 4)																								
A	CHEMICAL ABSTRACTS, Band 87, Nr. 21, 21. November 1977, Columbus, Ohio, USA  KUTSUMA, TERUO; SUGAI, SABURO; IKAWA, HIROSHI; HASEGAWA, YOSHIHIRO; "1-(1,3-Dioxolan-4-yl-methyl)piperidinol derivatives." Seite 575, Spalte 2, Zusammenfassung Nr. 168 008d  & Japan.Kokai 77-78 875  --	1																									
A	CHEMICAL ABSTRACTS, Band 70, Nr. 13, 31. März 1969, Columbus, Ohio, USA  HARDIE, WALDO R.; AARON, JOSEPH E., JR.; "Synthesis of 1,3-dioxolan-4 yl-akyl guanidines." Seite 371, Spalte 1, Zusammenfassung Nr. 57 808u  & S.African 67 06 328  --	1	RECHERCHIERTE SACHGEBiete (Int. Cl.4)																								
A	CHEMICAL ABSTRACTS, Band 91, Nr. 5, 30. Juli 1979, Columbus, Ohio, USA  FAFF, JERZY; WOLINSKI, JERZY; BANDOLET, JERZY; WIDY-TYSZKIEWICZ, EWA; SZRENIAWSKI, ZBIGNIEW; "Preliminary screening of anti-cholinergic effect of new 1,3-dioxolane and 1,3-dioxane derivatives." Seite 18, Spalte 1, Zusammenfassung Nr. 32 647m  & Pol.J.Pharmacol.Pharm. 1978, 30 (4), 493-6  --	1																									
<p>Der vorliegende Recherchenbericht wurde für alle Patentansprüche erstellt.</p> <table border="1"> <tr> <td>Recherchendort WIEN</td> <td>Abschlußdatum der Recherche 05-04-1988</td> <td>Prüfer HAMMER</td> </tr> <tr> <td colspan="2">KATEGORIE DER GENANNTEN DOKUMENTEN</td> <td>E : älteres Patentdokument, das jedoch erst am oder nach dem Anmelde datum v. röffentlicht worden ist</td> </tr> <tr> <td colspan="2">X : von besonderer Bedeutung allein betrachtet</td> <td>D : in der Anmeldung angeführtes Dokument</td> </tr> <tr> <td colspan="2">Y : von besonderer Bedeutung in Verbindung mit einer anderen V. röffentlicht derselben Kategorie</td> <td>L : aus andern Gründen angeführtes Dokument</td> </tr> <tr> <td colspan="2">A : technologischer Hintergrund</td> <td></td> </tr> <tr> <td colspan="2">O : nichtschriftliche Offenbarung</td> <td></td> </tr> <tr> <td colspan="2">P : Zwischenliteratur</td> <td></td> </tr> <tr> <td colspan="2">T : der Erfindung zugrunde liegende Theorien oder Grundsätze</td> <td>&amp; : Mitglied der gleichen Patentfamilie, übereinstimmendes Dokument</td> </tr> </table>				Recherchendort WIEN	Abschlußdatum der Recherche 05-04-1988	Prüfer HAMMER	KATEGORIE DER GENANNTEN DOKUMENTEN		E : älteres Patentdokument, das jedoch erst am oder nach dem Anmelde datum v. röffentlicht worden ist	X : von besonderer Bedeutung allein betrachtet		D : in der Anmeldung angeführtes Dokument	Y : von besonderer Bedeutung in Verbindung mit einer anderen V. röffentlicht derselben Kategorie		L : aus andern Gründen angeführtes Dokument	A : technologischer Hintergrund			O : nichtschriftliche Offenbarung			P : Zwischenliteratur			T : der Erfindung zugrunde liegende Theorien oder Grundsätze		& : Mitglied der gleichen Patentfamilie, übereinstimmendes Dokument
Recherchendort WIEN	Abschlußdatum der Recherche 05-04-1988	Prüfer HAMMER																									
KATEGORIE DER GENANNTEN DOKUMENTEN		E : älteres Patentdokument, das jedoch erst am oder nach dem Anmelde datum v. röffentlicht worden ist																									
X : von besonderer Bedeutung allein betrachtet		D : in der Anmeldung angeführtes Dokument																									
Y : von besonderer Bedeutung in Verbindung mit einer anderen V. röffentlicht derselben Kategorie		L : aus andern Gründen angeführtes Dokument																									
A : technologischer Hintergrund																											
O : nichtschriftliche Offenbarung																											
P : Zwischenliteratur																											
T : der Erfindung zugrunde liegende Theorien oder Grundsätze		& : Mitglied der gleichen Patentfamilie, übereinstimmendes Dokument																									



**EUROPÄISCHER RECHERCHENBERICHT**

EINSCHLÄGIGE DOKUMENTE			EP 88102676.9						
Kategorie	Kennzeichnung des Dokuments mit Angabe, soweit erforderlich, der maßgeblichen Teile	Betrifft Anspruch	KLASSIFIKATION DER ANMELDUNG (Int. Cl. 4)						
A	<p>CHEMICAL ABSTRACTS, Band 101, Nr. 17, 22. Oktober 1984, Columbus, Ohio, USA</p> <p>HSI, RICHARD S.P.; JOHNSON, TOMMY D.; STOLLE, WAYNE T.; "Carbon-14 and tritium labeled guanadrel sulfate." Seite 710, Spalte 2, Zusammenfassung Nr. 151 783n</p> <p>&amp; J. Labelled Compd. Radiopharm. 1984, 21 (3), 237-51</p> <p>-----</p>	1							
RECHERCHIERTE SACHGEBiete (Int. Cl. 4)									
<p>Der vorliegende Recherchenbericht wurde für alle Patentansprüche erstellt.</p> <table border="1" style="width: 100%; border-collapse: collapse;"> <tr> <td style="width: 33%;">Recherchenort</td> <td style="width: 33%;">Abschlußdatum der Recherche</td> <td style="width: 34%;">Prüfer</td> </tr> <tr> <td>WIEN</td> <td>05-04-1988</td> <td>HAMMER</td> </tr> </table> <p><b>KATEGORIE DER GENANNTEN DOKUMENTEN</b></p> <p>X : v n besonderer Bedeutung all in betrachtet  Y : v n besonderer Bedeutung in Verbindung mit einer anderen Veröffentlichung d rselben Kategorie  A : technologischer Hintergrund  O : nichttechnische Offenbarung  P : Zwischenliteratur  T : der Erfindung zugrund liegende Theorien oder Grundsätze</p> <p>E : älteres Patentdokument, das jedoch erst am oder nach dem AnmeldeDatum veröffentlicht worden ist  D : in der Anmeldung angeführtes Dokument  L : aus andern Gründen angeführtes Dokument</p> <p>&amp; : Mitglied der gleichen Patentfamilie, übereinstimmendes Dokument</p>				Recherchenort	Abschlußdatum der Recherche	Prüfer	WIEN	05-04-1988	HAMMER
Recherchenort	Abschlußdatum der Recherche	Prüfer							
WIEN	05-04-1988	HAMMER							

**THIS PAGE BLANK (USPTO)**